

UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE



HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES DE L'UNIVERSITÉ
PARIS VI

spécialité : Physique atomique

présentée par
Thomas Zanon-Willette

*ÉTUDES DE TRANSITIONS ATOMIQUES PERMISES ET INTERDITES
PAR SPECTROSCOPIE LASER EN VUE D'UNE APPLICATION AUX
HORLOGES OPTIQUES*

Soutenue le 06 mars 2014 devant le jury composé de :

Rapporteurs

Mme.	Anne	Amy-Klein	LPL
M.	Fabien	Bretenaker	LAC
M.	Johannes	Orphal	KIT

Examineurs et membres invités

M.	Ennio	Arimondo	Université de Pise
M.	Jean	Dalibard	Collège de France / LKB
M.	Noel	Dimarcq	SYRTE / Observatoire de Paris
M.	Nicolas	Treps	LKB (Président de jury)

Remerciements

Je suis tout d'abord très reconnaissant à Marie-Lise Dubernet-Tuckey et Christof Jansen ainsi qu'aux membres du laboratoire qui m'auront soutenu sans faille évidente au cours de la période de rédaction de ce mémoire (plus spécifiquement grâce aux : tu as fini ? et ton jury ? la date de soutenance, c'est quand ?.....).

Marie-Lise m'a accueilli en 2011 en tant que maître de conférences de l'UPMC au sein du Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique, unité de recherche qu'elle a dirigée jusqu'à l'intégration du laboratoire, au 1er janvier 2014, dans le Laboratoire d'Etudes du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique et Atmosphères LERMA2. Ses remarques et ses conseils auront fini par me persuader de préparer rapidement cette habilitation à diriger des recherches pour en exploiter au mieux les connaissances scientifiques accumulées au cours de mes différents stages post-doctoraux. Je remer-

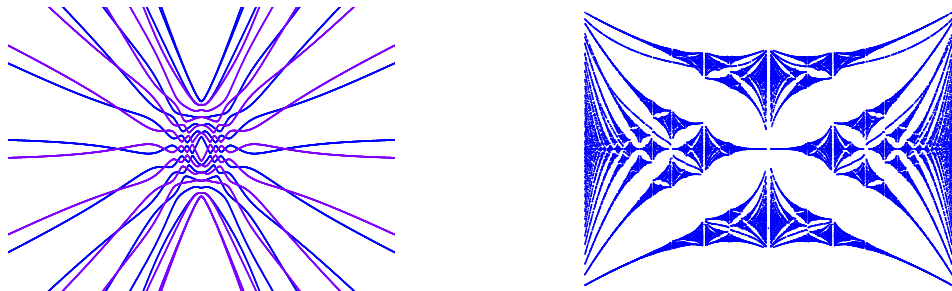


Diagramme en énergie de Autler-Townes d'un spin $1/2$ habillé par un champ de photons de radiofréquence et diagramme appelé "papillon de Hofstadter" des niveaux d'énergie d'un électron dans un réseau carré spatialement périodique soumis à un flux de champ magnétique intense.

cie très fortement Anne Amy-Klein, Fabien Bretenaker et Johannes Orphal d'avoir accepté d'être mes rapporteurs pour ce mémoire. Je remercie également très chaleureusement Nicolas Treps, Jean Dalibard, Ennio Arimondo et Noel Dimarcq d'avoir accepté la tâche d'être examinateur. Le choix d'un tel jury a reposé en très grande partie sur ces nombreuses rencontres réalisées au cours de ma formation doctorale, de séminaires, d'activités communes d'enseignement à l'université ou de colloques et conférences lointaines et plus récentes. Bien que ce mémoire ne traite que de physique atomique des horloges accompagnée par un trouble évident que je qualifierai d'obsessionnel compulsif (le TOC du TIC-TAC), il est évident que j'ai pu découvrir puis approfondir d'autres thèmes de recherche comme l'optique non-linéaire et les oscillateurs paramétriques grâce à Jean-Jacques Zondy et Malo Cadoret, la spectroscopie des gaz quantiques dégénérés, la condensation de Bose-Einstein et l'atome habillé avec Bruno Laburthe-Tolra, Etienne Maréchal et Laurent Vernac.

Je ne peux pas m'empêcher de repenser aux nombreuses discussions avec Christian Rouillé concernant la Physique Quantique et l'électron (celui de Millikan, pas celui de Bohr). Je remercie Michèle Glass-Maujean pour ses nombreuses remarques et sa disponibilité permanente. Je n'oublierai pas que Michèle considère que je suis probablement le dernier à faire de la spectroscopie des années 50....bon d'accord la méthode de la fraction continue, ce n'est pas tout jeune... Je suis énormément redevable à deux personnes, Emeric de Clercq et Ennio Arimondo, qui m'ont accompagné sans jamais m'abandonner au cours de toutes ces années de recherche et qui continueront, je le souhaite de tout coeur, à poursuivre avec moi des travaux en physique fondamentale. Un jour, je finirai bien par attraper ce fameux papillon!!! Je suis persuadé qu'il y a beaucoup à apprendre des modèles développés en théorie quantique du solide pour imaginer de nouvelles horloges atomiques.

Ces quelques lignes ne suffiront probablement pas à exprimer toute ma gratitude à l'ensemble des personnes rencontrées au cours de mes différentes activités de recherche, mais elles auront le mérite d'avoir été écrites.

A mes frères et bien-sûr à mon atome de strontium 88!

Table des matières

I	Introduction	11
II	Activités de recherche	17
1	Spectroscopie laser des états magnétiques d'un spin nucléaire	19
1.1	Structure magnétique d'un alcalin (^{133}Cs)	21
1.1.1	Les différents régimes d'interaction avec le champ magnétique	22
1.1.2	La formule de Breit-Rabi de l'état $6^2S_{1/2}$	23
1.1.3	La transition d'horloge micro-onde de l'état $6^2S_{1/2}$	25
1.2	Structure magnétique d'un alcalino-terreux (^{87}Sr)	28
1.2.1	Influence du spin nucléaire	28
1.2.2	La théorie de Breit-Wills en couplage intermédiaire	28
1.2.3	La formule de Breit-Rabi de l'état excité 3P_0	32
1.2.4	Influence du terme quadrupolaire et de la fonction d'onde radiale en configuration (sp)	35
1.3	Observation de la transition d'horloge optique $^1S_0 \mapsto ^3P_0$	36
1.3.1	Le laser ultra-stable à 698 nm	38
1.3.2	Reconstruction de la structure atomique Zeeman du ^{87}Sr : mesure de la correction δg du facteur de Landé de l'état 3P_0	40
1.4	Habillage radiofréquence de spins nucléaires sur les isotopes ^{87}Sr , ^{171}Yb et ^{199}Hg	41
1.4.1	Renormalisation du facteur de Landé et déplacement de Bloch-Siegert d'un spin	43
1.4.2	Le champ magnétique "magique" pour un spin nucléaire	45
1.5	Remarques générales et perspectives	46
1.6	Articles associés	48
1.6.1	Opt. Lett 32, 641 (2007)	48
1.6.2	Phys. Rev. A 76, 022510 (2007)	52
1.6.3	Phys. Rev. Lett. 109, 223003 (2012)	67
1.6.4	Phys. Rev. A 87, 023424 (2013)	75
	Bibliographie	83

2	Spectroscopie laser à 2 photons par résonance noire	87
2.1	Probabilité de transition Ramsey et Hyper-Ramsey	89
2.1.1	Excitation de Rabi	89
2.1.2	Probabilité de transition Hyper-Ramsey (Ramsey)	90
2.1.3	Déplacement de fréquence dynamique Ramsey et Hyper-Ramsey . .	94
2.2	Les résonances noires	96
2.2.1	Le piégeage cohérent de population	97
2.2.2	La transparence induite électromagnétiquement	98
2.2.3	Equations d'évolutions adiabatiques dans la base $\{ \Psi_+\rangle, \Psi_{NC}\rangle\}$. .	99
2.2.4	Solution stationnaire d'un profil de résonance noire à très faible sa- turation optique	102
2.2.5	Temps de pompage longitudinal et transverse	103
2.2.6	Les franges de résonance noire	104
2.2.7	Déplacement de fréquence EIT/Raman stationnaire et dynamique .	109
2.3	Résonance atomique induite sur l'isotope bosonique ^{88}Sr	112
2.3.1	Configuration radiative de l'état relais 1P_1 et temps de pompage du ^{88}Sr	116
2.3.2	Compensation dynamique des déplacements lumineux pour une hor- loge atomique à ^{88}Sr	118
2.3.3	Dispositif expérimental des faisceaux EIT/Raman à 430 THz	124
2.3.4	Conclusions et perspectives	124
2.4	Articles associés	127
2.4.1	Phys. Rev. A. 84, 062502 (2011)	127
2.4.2	Phys. Rev. Lett. 97, 233001 (2006)	145
	Bibliographie	150
3	Vers la spectroscopie à très haute résolution de molécules d'origine at- mosphérique et astrophysique	155
3.1	Le spectromètre du laboratoire à diode laser asservie sur un He:Ne	157
3.2	Le projet : spectromètre laser largement accordable à très haute résolution dans l'infrarouge	159
3.2.1	Spectroscopie d'absorption saturée de transitions rovibrationnelles de $^{16}\text{O}_3$ à $9.6\ \mu\text{m}$	160
3.2.2	Stabilisation en longueur d'onde d'une diode QCL contrôlée à l'aide d'un peigne de fréquences optiques	162
3.2.3	Variation des constantes fondamentales, transitions rotationnelles et spectroscopie laser à 2 photons	163
	Bibliographie	165
A	La structure atomique d'un alcalin : exemple du ^{133}Cs	169
A.1	Correction magnétique en champ faible	169
A.2	Hamiltonien hyperfin et magnétique en champ intermédiaire	170

A.3	La structure atomique des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$	172
B	La structure atomique d'un alcalino-terreux : exemple du ^{87}Sr	175
B.1	Structure magnétique de l'état 3P_0 en théorie des perturbations	175
B.2	Traitement non perturbatif de la structure atomique d'une configuration (sl) en couplage intermédiaire	179
B.2.1	Hamiltonien hyperfin et magnétique	180
B.2.2	Composantes hyperfines	181
B.2.3	Composantes magnétiques	184
B.2.4	Structure hyperfine et magnétique des états 3P_1 , 1P_1 et 3P_2	185
III	CURRICULUM VITAE	189

Première partie

Introduction

En 2005, après avoir soutenu une thèse en physique atomique expérimentale au SYRTE (Systèmes de Référence Temps-Espace) à l'Observatoire de Paris sur le développement d'une horloge micro-onde fonctionnant sur le principe du piégeage cohérent de population, je suis parti, pendant deux ans, au JILA (Joint Institute of Laboratory Astrophysics) participer aux travaux sur l'une des premières horloges optiques utilisant les atomes de strontium ^{87}Sr . J'ai découvert sur place, sous la direction de Jun Ye et en interaction avec les étudiants en thèse Andrew Ludlow et Marty Boyd, un champ de recherche passionnant en métrologie des fréquences optiques. Durant ces deux années, j'ai complété mes connaissances expérimentales et pour progresser dans la détermination complète d'une quantité physique, j'ai essayé d'expliquer les résultats expérimentaux obtenus par des modèles théoriques rigoureux en physique atomique. J'ai également découvert de manière expérimentale le monde de l'optique non-linéaire avec la synthèse de fréquences optiques. Revenu, pour occuper pendant un an, un poste d'attaché temporaire enseignement-recherche au LPL (Laboratoire de Physique des Lasers), j'ai découvert, sous la direction de Bruno Laburthe-Tolra et avec Quentin Beauvils, le monde des gaz quantiques de bosons et de fermions dégénérés lors de la seconde observation expérimentale, en décembre 2007, d'un condensat de Bose-Einstein d'atomes de chrome ^{52}Cr après celle obtenue par le groupe de Tilman Pfau en 2005. C'est dans cette équipe que j'ai pu étudier, sous l'impulsion de Bruno Laburthe-Tolra, l'habillage radiofréquence d'atomes ultra-froids en présence d'interactions dipolaires magnétiques. En 2008, j'ai intégré l'équipe de métrologie longueur-laser de l'INM (Institut National de Métrologie) où Jean-Jacques Zondy travaille sur le développement des oscillateurs paramétriques optiques (OPOs) pour la spectroscopie moléculaire. En assurant l'encadrement du travail expérimental d'Emeline Andrieux et Abdallah Rihan sur deux années, nous avons construit deux OPOs dont une source laser de type SRO (Signal Resonant OPO) continûment accordable sur plus de 500 GHz autour de 3-4 μm dans l'infrarouge moyen.

Ayant abordé plusieurs champs de recherche au cours de mes activités scientifiques, je me focalise, dans ce mémoire, sur les aspects théoriques et expérimentaux de la spectroscopie laser de transitions atomiques permises et interdites en vue d'une application aux horloges atomiques.

Ces travaux de recherche se situent à l'interface entre la physique atomique des horloges et l'instrumentation laser optique/micro-onde avec pour objectif de réaliser de nouveaux spectromètres à très haute résolution en fréquence. Parmi les spectromètres, les horloges optiques constituent la nouvelle génération d'étalons de fréquence capables de mesurer de très faibles corrections de quelques mHz sur des transitions atomiques de référence de plusieurs centaines de THz. L'utilisation d'un réseau optique non perturbatif à la longueur d'onde dite magique contenant de nombreux atomes refroidis par laser avec des temps d'interrogation de plus d'une seconde permet de réaliser la spectroscopie à très haute résolution d'une transition atomique faiblement permise par couplage dipolaire électrique. Avec de telles propriétés métrologiques, les horloges à atomes froids réalisent aujourd'hui

des tests extrêmement contraignants sur la stabilité temporelle de certaines constantes fondamentales ou encore en relativité générale avec le test du principe d'équivalence.

Je présente, dans ce mémoire, les principaux aspects théoriques que j'ai développés et les aspects expérimentaux auxquels j'ai participé concernant la première étude intégrale du spectre Zeeman de l'isotope fermionique ^{87}Sr à la fréquence optique de 430 THz (698 nm). La spectroscopie laser a permis notamment de mesurer le facteur de Landé différentiel du niveau $^3\text{P}_0$ induit par la présence d'un couplage spin-orbite avec le spin nucléaire $I=9/2$ de l'atome. Afin d'éliminer des effets systématiques liés aux fluctuations de polarisation du laser d'horloge dans le piège dipolaire et d'en améliorer l'exactitude au niveau relatif de 10^{-17} , le JILA a proposé en 2005 la réalisation de la spectroscopie laser induite par résonance noire en préparant l'isotope bosonique ^{88}Sr , de spin nucléaire nul, dans une superposition d'états quantiques transparente à la lumière laser. Face au problème fondamental du déplacement lumineux (ou "light-shift" en anglais) qu'il faut toujours minimiser pour éviter de perturber les états atomiques interrogés par le laser, l'interrogation continue proposée par le JILA ne permettait pas de préparer la superposition complète des états atomiques avant 160 secondes. J'ai alors proposé de remplacer l'interrogation continue de la transition d'horloge bosonique par une interaction laser EIT/Raman en régime impulsionnel qui réduit ce temps de préparation tout en éliminant la correction de fréquence induite par le déplacement lumineux.

Cette transparence induite par une séquence d'impulsions lasers séparées dans le temps, mise au point au cours de mon précédent travail de thèse au SYRTE, avait permis d'observer expérimentalement les premières franges de résonance noire pour un fonctionnement en mode horloge à la fréquence micro-onde de 9.2 GHz. Après une étude approfondie, le groupe du JILA a suivi ma proposition et s'est lancé dans la mise au point d'une stabilisation phase-fréquence entre un laser bleu à 461 nm et un laser infrarouge à 1.3 μm pour la spectroscopie du boson ^{88}Sr .

Au même moment, le NIST (National Institute of Standards and Technology) a proposé puis démontré expérimentalement en 2006 l'activation de la transition interdite d'une espèce bosonique à l'aide d'un mélange entre états triplets excités $^3\text{P}_0$ et $^3\text{P}_1$ avec un petit champ magnétique statique très facile à mettre en oeuvre. Toutefois, afin d'établir un taux d'excitation nécessaire pour observer rapidement la résonance sur le boson, il convient de trouver un compromis entre l'intensité du champ laser et l'amplitude du champ magnétique statique pour ne pas trop perturber la fréquence d'horloge. Comme alternative à la technique spectroscopique du NIST, j'ai proposé en 2012, à partir des travaux réalisés par Serge Haroche et Claude Cohen-Tannoudji sur l'atome habillé par des photons de radiofréquence, la réalisation d'un spectre Zeeman artificiel sur l'espèce fermionique du ^{87}Sr , capable d'annuler au premier ordre la sensibilité aux fluctuations du champ magnétique statique nécessaire à la levée de dégénérescence des sous-niveaux Zeeman de la transition atomique.

En 2010, face au problème de la stabilisation de l'amplitude du champ magnétique et de l'intensité laser requise pour atteindre une exactitude relative meilleur que 10^{-17} ,

le groupe des horloges optiques du NIST revient sur la technique des franges de Ramsey et propose une nouvelle méthode appelée spectroscopie Hyper-Ramsey qui réduit ces fluctuations de plusieurs ordres de grandeur. Entre 2013 et le début de l'année 2014, mes derniers travaux qui feront l'objet d'une nouvelle publication, montrent que la spectroscopie EIT/Raman et Hyper-Ramsey induisent des déphasages sur la fonction d'onde d'un atome que l'on peut soigneusement contrôler afin de diminuer fortement la sensibilité de la transition d'horloge aux fluctuations de champs électriques ou magnétiques.

Recruté comme Maître de conférences en 2011 au laboratoire de physique moléculaire pour l'atmosphère et l'astrophysique à l'UPMC (LPMAA maintenant intégré au Laboratoire d'Etudes du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique et Atmosphères LERMA2), j'ai travaillé pendant 2 ans sur le dispositif SIMCO (spectromètre à diode laser pour la mesure de la composition isotopique en CO_2 atmosphérique) afin de caractériser sa précision instrumentale et les sources potentielles d'effets systématiques. Le résultat principal a été l'élimination de la non-linéarité en fréquence lors du balayage en courant de la source laser et une résolution sur la mesure de concentration totale du CO_2 atmosphérique au niveau de 0.06 ppmv limitée par la bouteille de gaz de calibration. Mon thème de recherche s'oriente désormais vers le développement instrumental d'une nouvelle génération de spectromètres à diode laser largement accordable pour la spectroscopie moléculaire à très haute résolution d'intérêt atmosphérique et astrophysique. L'équipe du pôle "molécules dans l'Univers" au LERMA2 s'intéresse aux études fondamentales sur les effets isotopiques de molécules atmosphériques comme l'ozone O_3 et ses isotopologues avec des mesures de précision concernant les paramètres des raies moléculaires (intensité, déplacement collisionnel, largeur de raie, section efficace d'absorption, etc...) dans le domaine du THz. Cette spectroscopie à très haute résolution repose aujourd'hui sur la stabilisation en fréquence de diodes à sel de plomb par le contrôle interférométrique de la longueur d'onde d'émission du laser. L'équipe dirigé par Christof Janssen, dont je fais partie, s'oriente aujourd'hui vers la conception d'un spectromètre à diode laser à cascade quantique (QCL) stabilisée dans l'infrarouge lointain à partir d'un peigne de fréquence optique dont le taux de répétition sera référencé par un étalon de fréquence micro-onde du SYRTE à l'aide d'une fibre optique. A plus long terme, ce projet pourra s'inspirer des développements rapides menés sur les techniques de refroidissement et de piégeage d'espèces moléculaires à fort moment dipolaire, ayant également un rôle important dans la physico-chimie de l'enveloppe atmosphérique terrestre, afin d'améliorer encore l'exactitude des mesures de fréquences moléculaires.

Cette habilitation à diriger des recherches est composée de 3 chapitres concernant mes principales activités scientifiques en physique atomique et inclut le futur projet scientifique en spectroscopie moléculaire avec le LERMA2 :

- • **Le chapitre 1** présente les études théoriques que j'ai menées sur l'interaction des spins nucléaires avec les 2 électrons de valence d'une espèce atomique alcalino-terreuse et la caractérisation expérimentale de la sensibilité Zeeman de la transition

d'horloge. Il s'agissait de développer un modèle pertinent de type Breit-Wills en interaction de configuration intermédiaire entre un couplage spin-orbite global et individuel des 2 électrons avec le noyau atomique. Le résultat de ce modèle semi-empirique a permis ensuite la première confrontation d'une mesure expérimentale du facteur de Landé de l'état métastable 3P_0 avec la prédiction théorique. Je présente, pour finir, la technique d'habillage radiofréquence des spins nucléaires de différentes espèces fermioniques avec pour objectif de réduire l'influence de l'effet Zeeman linéaire et quadratique sur la transition d'horloge.

- • **Le chapitre 2** contient les outils nécessaires au développement expérimental d'une nouvelle horloge optique pour interroger une transition atomique à deux photons combinant le piégeage cohérent de population et la transparence induite électromagnétiquement avec l'interrogation impulsionnelle imaginée par N.F. Ramsey. Parmi les outils théoriques présentés, les équations d'évolution des populations et cohérences de la matrice densité sur un système à 3 niveaux d'énergie permettent d'analyser avec précision les effets de déplacements lumineux sur les états atomiques. Un modèle de fonction d'onde complexe incluant le phénomène d'émission spontanée est également utilisé pour rechercher des conditions adaptées sur la phase atomique contenue dans le signal spectroscopique, nécessaires à l'élimination des déplacements lumineux. Je présente le montage expérimental réalisé en 2007 des premiers faisceaux EIT/Raman asservis électroniquement et stabilisés en fréquence à 430 THz.
- • **Le chapitre 3** est consacré à mon nouveau thème de recherche comportant le développement d'un nouveau spectromètre laser à très haute résolution pour la métrologie des fréquences moléculaires en sciences atmosphériques et pour l'astrophysique de laboratoire. Ce chapitre contient une description du thème se situant à l'interface entre la physique moléculaire et le développement instrumental de sources lasers infrarouges ultra stables en fréquence.

Deuxième partie

Activités de recherche

Chapitre 1

Spectroscopie laser des états magnétiques d'un spin nucléaire

Publications associées :

1. "Compact thermal-noise-limited optical cavity for diode laser stabilization at 10^{-15} ", **Opt. Lett.** **32**, 641 (2007).
2. "Nuclear spin effects in optical lattice clocks", **Phys. Rev. A** **76**, 022510 (2007).
3. "Magic radio-frequency dressing of nuclear spins in high-accuracy optical clocks", **Phys. Rev. Lett.** **109**, 223003 (2012).
4. "Continued-fraction analysis of dressed systems : Application to periodically driven optical lattices", **Phys. Rev. A** **87**, 023424 (2013)

Ce chapitre présente mes activités de recherches post-doctorales réalisées sur une horloge optique utilisant l'espèce fermionique du strontium ^{87}Sr considéré comme un candidat potentiel pour la redéfinition de la seconde en métrologie Temps-Fréquence.

Pourquoi remplacer un alcalin par un alcalino-terreux ? Les horloges micro-onde avec l'exploitation de l'atome alcalin de césium ont un niveau de performance qui se situe aujourd'hui proche d'une exactitude relative de quelques 10^{-16} . Les fontaines atomiques ayant atteint pratiquement le bruit de projection quantique, pour améliorer encore ces performances, il faudrait augmenter le nombre d'atomes ou affiner la largeur de la résonance. Les améliorations à apporter sont assez limitées pour ces dispositifs. Elles résident davantage dans le choix d'un nouvel atome dont les performances métrologiques peuvent être réalisées avec un bien meilleur contrôle des degrés de liberté externes des variables atomiques comme l'effet de recul et l'effet Doppler avec un facteur de qualité de la résonance beaucoup plus élevé. Atteindre une exactitude relative à mieux que 10^{-16} nécessite alors de confiner le mouvement atomique dans un piège dipolaire non dissipatif capable de maintenir un nuage d'atomes pendant plusieurs secondes sans le perturber [1].

Les effets systématiques les plus contraignants liés aux mouvements atomiques sont maintenant bien maîtrisés, l'effet Doppler et le recul étant éliminés en régime de confinement Lamb-Dicke. Pour un alcalino-terreux comme le strontium ^{87}Sr (ou l'ytterbium ^{171}Yb), le calcul de la polarisabilité dynamique des états atomiques mis en jeu pour une horloge permet d'identifier l'existence d'une longueur d'onde "magique" de piégeage des atomes qui n'entraîne aucun déplacement de fréquence de la transition d'horloge même à forte intensité laser garantissant des performances métrologiques au niveau relatif de 10^{-17} . Cette longueur d'onde "magique" présente l'avantage de reporter le contrôle contraignant des fluctuations d'intensité du laser de piégeage sur le contrôle beaucoup plus aisé de sa longueur d'onde (par exemple un contrôle de $2 \cdot 10^{-4}\text{nm}$ à 813 nm est suffisant pour garantir une correction de fréquence d'horloge inférieure à $2 \cdot 10^{-17}$). A titre de comparaison, pour un alcalin comme le césium ^{133}Cs ou le rubidium ^{87}Rb , il n'existe pas directement de longueur d'onde "magique" de piégeage sauf si l'on ajoute un champ magnétique statique avec une orientation particulière par rapport à la direction de propagation du laser de confinement [2]. Concernant par exemple l'influence du rayonnement du corps noir, le déplacement relatif induit sur la position en fréquence de la transition d'horloge est estimé proche de $-1.7 \cdot 10^{-14}$ pour un alcalin comme le césium tandis qu'il chute à $-5.5 \cdot 10^{-15}$ pour le strontium et même à $-2.6 \cdot 10^{-15}$ pour l'ytterbium. Au fur et à mesure des études expérimentales de plus en plus poussées sur plusieurs espèces fermioniques comme les alcalino-terreux ^{87}Sr , ^{171}Yb ou les métaux de transition avec le mercure ^{199}Hg , supposés remplacer les étalons primaires de fréquence au césium, il est apparu nécessaire d'évaluer avec précision les interactions entre électrons et spins nucléaires.

L'objectif de mon travail sur la structure atomique d'un alcalino-terreux est donc triple :

1. Il s'agit d'abord de fournir pour la première fois une description la plus détaillée possible des états magnétiques d'une transition atomique du strontium ^{87}Sr à la fréquence de 430 THz . Mon travail a permis de proposer une formule équivalente à la formule de Breit-Rabi pour un alcalin qui décrit précisément la levée de dégénérescence des états Zeeman associés à cette transition optique dans un régime intermédiaire de champ magnétique ni faible ni fort. Je m'intéresse, dans ce contexte, à une modélisation précise de la structure magnétique entre l'état singulet 1S_0 et l'état triplet 3P_0 . Cette transition est faiblement permise en raison de l'interaction du spin nucléaire avec les deux électrons de valence du fermion. Le calcul du spectre est également applicable à d'autres espèces fermioniques présentant une configuration électronique (sp) similaire comme l'ytterbium ou le mercure.
2. Il s'agit ensuite de valider expérimentalement cette description à l'aide des premières caractérisations du spectre Zeeman associé à la transition d'horloge du ^{87}Sr réalisées avec l'équipe strontium du JILA. J'ai donc mené avec ce groupe un test expérimental qui devait être suffisamment contraignant pour garantir une première évaluation de l'exactitude relative de l'horloge avec l'objectif d'atteindre un niveau requis inférieur

à 10^{-16} .

3. Enfin, mes travaux permettent de fournir la première formule exacte incluant le terme d'interaction dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique dans le calcul des énergies propres des niveaux hyperfins des états excités 3P_1 et 1P_1 utilisés pour la préparation des états atomiques par pompage optique et le refroidissement laser.

Mes derniers travaux, plus récents, se concentrent sur la modification de la structure magnétique d'un isotope fermionique alcalino-terreux en présence d'un habillage radio-fréquence du spin nucléaire. L'objectif, cette fois-ci, est d'éliminer le déplacement Zeeman linéaire et quadratique de la transition d'horloge tout en minimisant sa sensibilité aux fluctuations résiduelles du champ magnétique statique pour atteindre une exactitude relative proche de 10^{-18} . Cette étude est réalisée avec la méthode de la fraction continue discutée dans mon article sur le contrôle de l'effet tunnel dans un réseau optique.

Parmi les nombreux effets systématiques existants, le contrôle fin du déplacement de fréquence de la transition d'horloge provoqué par la présence d'un champ magnétique statique qui sépare les sous-niveaux Zeeman est fondamental. Si les recherches menées pendant les années 1940 sur la structure atomique des alcalins a permis d'obtenir une connaissance quasi-parfaite du spectre Zeeman d'une transition d'horloge micro-onde avec la formule de Breit-Rabi [3], il n'existait pas en 2006 de formule équivalente capable de reproduire avec précision l'éclatement Zeeman d'une transition d'horloge optique d'un alcalino-terreux pressenti pour devenir un nouveau candidat sur la redéfinition de la seconde. Il a donc fallu se lancer dans une description détaillée de la structure magnétique du groupe II du tableau de Mendeleïev contenant deux électrons de valence puis mener une étude expérimentale pour valider ces travaux. C'est l'objet de ce que je présente dans la suite de ce chapitre en commençant par rappeler les résultats bien connus du césium avant d'aborder le problème plus complexe du strontium.

1.1 Structure magnétique d'un alcalin (^{133}Cs)

Cette section rappelle comment on évalue de manière exacte, en physique atomique des horloges, la levée de dégénérescence des sous-états Zeeman des niveaux hyperfins des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$ du césium. Le césium ^{133}Cs possède 55 électrons répartis en sous couches électroniques dont la dernière couche incomplète qui nous intéresse est l'état fondamental du césium $6^2S_{1/2}$ avec l'unique valeur $J = S = 1/2$. De nombreuses données expérimentales sur le ^{133}Cs sont fournies par la référence [4].

Le couplage spin-orbite lève la dégénérescence des états notés respectivement $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$ dans le premier état excité $L = 1$ (J prend les 2 valeurs possibles $J = 1/2$ ou $J = 3/2$). Le spin nucléaire du césium vaut $I = 7/2$. La structure hyperfine du césium se décompose alors en différents niveaux avec $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$. Pour le niveau $6^2S_{1/2}$, on a $F = 3$ et $F = 4$. Pour le niveau $6^2P_{1/2}$, on a $F' = 3$ et $F' = 4$. Pour le niveau $6^2P_{3/2}$, on

a $F' = 2, 3, 4, 5$ comme le montre la figure Fig. 1.1.

1.1.1 Les différents régimes d'interaction avec le champ magnétique

Le hamiltonien H de l'atome alcalin en absence de structure fine inclut un terme de couplage dipolaire magnétique hyperfin noté $A(^{2S+1}L_J)$ et l'effet du champ magnétique $\mu_B B$ avec le magnéton de Bohr μ_B . Il est exprimé par N.F. Ramsey dans son livre Molecular Beams [5]. Le hamiltonien nécessaire au calcul s'écrit en prenant le champ magnétique \vec{B} selon l'axe Oz comme :

$$H = A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \vec{I} \cdot \vec{J} + g_J \mu_B B/\hbar \cdot J_Z - g_I \mu_B B/\hbar \cdot I_Z \quad (1.1)$$

avec le facteur de Landé effectif $g_J = g_L \frac{J(J+1) - S(S+1) + L(L+1)}{2J(J+1)} + g_S \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$ où $g_L \approx 1$, $g_S \approx 2$ et le facteur de Landé nucléaire noté $g_I > 0$. On cherche ensuite à établir l'expression de ce hamiltonien dans différentes bases possibles afin de décrire l'influence du champ magnétique sur les niveaux d'énergies.

- *Cas d'un couplage en champ magnétique intense* : Les moments angulaires \vec{I} et \vec{J} précessent autour du champ magnétique directeur à des vitesses angulaires différentes. \vec{F} n'est plus défini. Les projections respectives de \vec{J} et \vec{I} le long du champ magnétique directeur conduisent aux bons nombres quantiques m_J et m_I avec $(2J+1)(2I+1)$ valeurs possibles (effet Paschen-Bach). On retient la base des états propres $|m_I, m_J\rangle$. Le hamiltonien d'interaction s'écrit dans cette base :

$$\begin{aligned} H|m_I, m_J\rangle = & A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \left[\frac{\bar{I}_+ \bar{J}_-}{2} |m_I + 1, m_J - 1\rangle + \frac{\bar{I}_- \bar{J}_+}{2} |m_I - 1, m_J + 1\rangle \right] \\ & + A(^{2S+1}L_J) m_I m_J |m_I, m_J\rangle \\ & + g_J \mu_B B m_J |m_I, m_J\rangle - g_I \mu_B B m_I |m_I, m_J\rangle \end{aligned} \quad (1.2)$$

où les composantes \bar{I}_\pm, \bar{J}_\mp qui traduisent l'action des opérateurs de projection I_+, J_- sur les états propres $|m_I, m_J\rangle$ sont définies par (voir annexe A) :

$$\bar{I}_\pm \bar{J}_\mp = \hbar^2 \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I \pm 1)} \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J \mp 1)}. \quad (1.3)$$

- *Cas d'un couplage en champ magnétique faible* : Lorsqu'un atome est plongé dans un champ magnétique faible, le terme de structure fine est très grand devant le terme d'interaction magnétique qui peut être alors traité comme une perturbation sur les niveaux d'énergies atomiques. Les moments angulaires électronique $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ et nucléaire \vec{I} sont couplés en un moment angulaire total $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ qui est soumis à

un mouvement de précession autour de la direction du champ magnétique directeur \vec{B} . Le nombre m_F reste un bon nombre quantique. Dans la base des états propres $|F, m_F\rangle$, le hamiltonien d'interaction s'écrit [6] :

$$\begin{aligned} H|F, m_F\rangle = & A(2S+1)L_J \frac{F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)}{2} |F, m_F\rangle \\ & + g_J \mu_B B m_F \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} |F, m_F\rangle \\ & - g_I \mu_B B m_F \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} |F, m_F\rangle \\ & - (g_J + g_I) \bar{F}_+ \mu_B B / \hbar |F+1, m_F\rangle - (g_J + g_I) \bar{F}_- \mu_B B / \hbar |F-1, m_F\rangle \end{aligned} \quad (1.4)$$

où les composantes \bar{F}_+ , \bar{F}_- qui traduisent l'action des opérateurs de projection F_+ , F_- sur les états propres $|F, m_F\rangle$ sont définies par (voir annexe A) :

$$\begin{aligned} \bar{F}_+ &= \hbar \sqrt{\frac{(F+1)^2 - m_F^2)((I+J+1)^2 - (F+1)^2)((F+1)^2 - (J-I)^2)}{4(F+1)^2(4(F+1)^2 - 1)}} \\ \bar{F}_- &= \hbar \sqrt{\frac{(F^2 - m_F^2)((I+J+1)^2 - F^2)(F^2 - (J-I)^2)}{4F^2(4F^2 - 1)}} \end{aligned} \quad (1.5)$$

- *Cas d'un couplage en champ magnétique intermédiaire* : En régime intermédiaire, il n'y plus de base de représentation privilégiée et on ne peut pas en général trouver une base simple dont les énergies propres sont diagonales. Il faut donc avoir recours à un calcul exact et non perturbatif. Il faut résoudre une équation séculaire qui dépend de la taille de la matrice des énergies à diagonaliser. Pour obtenir la structure Zeeman la plus complète possible, il faut alors étudier les interactions magnétiques des spins en régime intermédiaire entre un champ magnétique faible et un champ magnétique intense. Pour le calcul de la levée de dégénérescence des niveaux hyperfins $F = 3, 4$ de l'état $6^2S_{1/2}$, on se place dans la base des états propres $|m_I = m_F - m_J, m_J\rangle$ détaillée dans l'annexe A en utilisant le hamiltonien de l'équation Eq. 1.2 [5]. Le calcul en régime intermédiaire permet d'obtenir le spectre magnétique complet des niveaux hyperfins $F = 3, 4$ de l'état fondamental $6^2S_{1/2}$ qui définissent la transition d'horloge du césium.

1.1.2 La formule de Breit-Rabi de l'état $6^2S_{1/2}$

Le calcul a été effectué pour un alcalin, la première fois, par I. Rabi et G. Breit en 1931 [3]. On se place dans la base $\{|m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle\}$. La matrice qui décrit la structure hyperfine et les énergies magnétiques associées à l'état $6^2S_{1/2}$ (avec $J = S = 1/2, L = 0$)

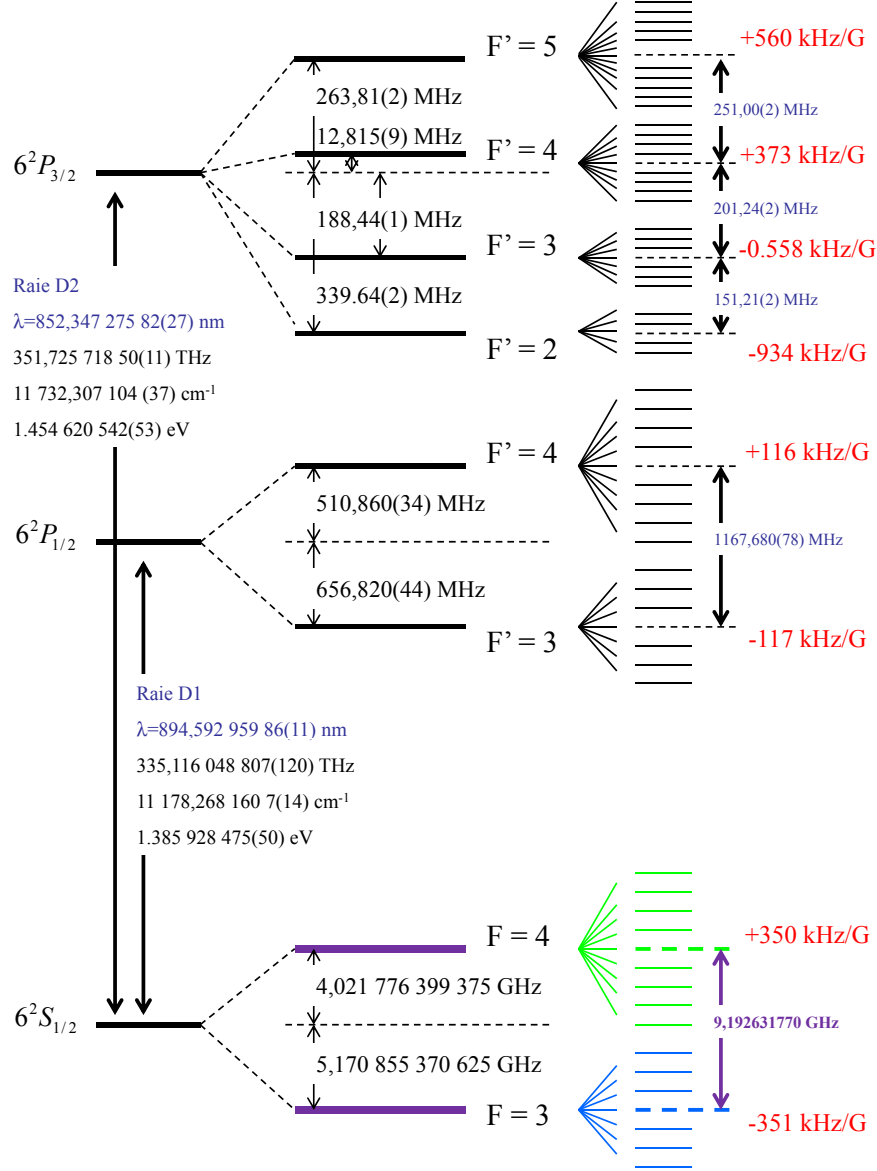


FIGURE 1.1 – Valeurs expérimentales des niveaux d'énergie du ^{133}Cs dans l'état fondamental et le premier état excité d'après la référence [4]. La sensibilité des niveaux hyperfins au champ magnétique est également indiquée. La transition d'horloge est réalisée entre les niveaux hyperfins $F = 3$ et $F = 4$ de l'état $6^2S_{1/2}$.

s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{2}A(^{2S+1}L_J)(m_F - \frac{1}{2}) + \frac{1}{2}g_J\mu_B B & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2}\sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2})} \\ -g_I\mu_B B(m_F - \frac{1}{2}) & \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}} \\ \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2}\sqrt{I(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2})} & -\frac{1}{2}A(^{2S+1}L_J)(m_F + \frac{1}{2}) \\ \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{4}} & -\frac{1}{2}g_J\mu_B B \\ & -g_I\mu_B B(m_F + \frac{1}{2}) \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

La diagonalisation de cette matrice conduit à la formule bien connue de Breit-Rabi pour un alcalin dans l'état fondamental :

$$\Delta E_Z^\pm = -\frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \frac{(I+1/2)}{2I+1} - g_I\mu_B m_F B \pm \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} (I+1/2) \sqrt{1 + 4m_F \frac{X}{2I+1} + X^2} \quad (1.7)$$

avec $X = \frac{(g_J + g_I)\mu_B B}{(I+1/2)A(^{2S+1}L_J)}$.

Dans le cas du niveau $6^2S_{1/2}$ de l'atome de ^{133}Cs , la transition atomique d'horloge a été choisie entre les états $|F=3, m_F=0\rangle$ et $|F=4, m_F=0\rangle$ car elle n'a pas d'effet Zeeman du premier ordre mais un déplacement quadratique qui vaut :

$$\Delta\nu_{\text{horloge}}/B^2 = \frac{(g_J + g_I)^2 \mu_B^2}{(2I+1)A(^{2S+1}L_J)} = 427.45 \pm 0.01 \text{ } 10^8 \text{ Hz}/T^2 \quad (1.8)$$

L'incertitude sur la mesure du déplacement Zeeman du second ordre du césium est habituellement estimée à partir de la référence [7]. La structure complète hyperfine de l'atome de césium des états $6^2S_{1/2}, 6^2P_{1/2}, 6^2P_{3/2}$ incluant les énergies magnétiques est présentée en détail dans l'annexe A. La figure Fig. 1.2 représente l'éclatement Zeeman de la transition d'horloge $6^2S_{1/2}$ obtenu à l'aide de la formule de Breit-Rabi. D'après cette formule, pour de faibles valeurs du champ magnétique, l'énergie des niveaux pour lesquels les m_F sont différents de zéro varie de manière quasi-linéaire. Pour de fortes valeurs du champ magnétique, les niveaux d'énergie se séparent en deux groupes. L'énergie acquise par l'électron dans le champ magnétique devient prépondérante devant son énergie d'interaction avec le spin du noyau. En règle générale, l'énergie de l'interaction magnétique entre l'électron externe et le spin du noyau est faible. Il en résulte que la fréquence hyperfine de la transition d'horloge dans l'état fondamental appartient au domaine des hyperfréquences.

1.1.3 La transition d'horloge micro-onde de l'état $6^2S_{1/2}$

La définition de la seconde repose aujourd'hui sur la transition micro-onde $|F=3, m_F=0\rangle \leftrightarrow |F=4, m_F=0\rangle$ entre les deux niveaux hyperfins de l'état fondamental du césium. La fréquence exacte adoptée par le BIPM en 1967 est 9192631770 Hz. La transition choisie $|F=3, m_F=0\rangle \leftrightarrow |F=4, m_F=0\rangle$ est une transition dipolaire magnétique de type M1 or il est très peu probable que l'atome puisse effectuer une transition dipolaire magnétique spontanée. Cela signifie que le temps d'observation de cette

transition dipolaire peut largement être supérieur à la seconde avec un facteur de qualité atomique $\nu/\Delta\nu$ de l'ordre de 10^{10} . La levée de dégénérescence du niveau $6^2S_{1/2}$ en fonction du champ magnétique est représentée sur la figure Fig. 1.2. La méthode spectroscopique utilisée pour caractériser l'exactitude de l'horloge fait intervenir une séquence d'impulsions micro-ondes séparées par un temps de vol libre entre deux passages successifs dans une cavité micro-ondes comme le montre la figure Fig. 1.3. D'après la référence [9], la précision atteinte pour l'évaluation du champ magnétique sur la journée est de l'ordre de 1.4 pT (14 nG). L'incertitude sur le déplacement de la fréquence d'horloge, par effet Zeeman quadratique, qui est associée à l'instabilité du champ magnétique dans la fontaine vaut $2.6 \cdot 10^{-18}$. A ceci s'ajoute l'incertitude sur le coefficient $\Delta\nu_{\text{horloge}}/B^2$ lui même. Si on considère que celui-ci est connu à 10^6 Hz/T^2 près, on obtient une incertitude de $4 \cdot 10^{-18}$ sur le déplacement de la fréquence d'horloge (pour un champ magnétique moyen de 2 mG ($2 \cdot 10^{-7} \text{ T}$)). Au final, on estime que l'effet Zeeman quadratique est maîtrisé au niveau de 10^{-17} et n'est donc pas l'effet systématique limitant [9]. Le rayonnement thermique de

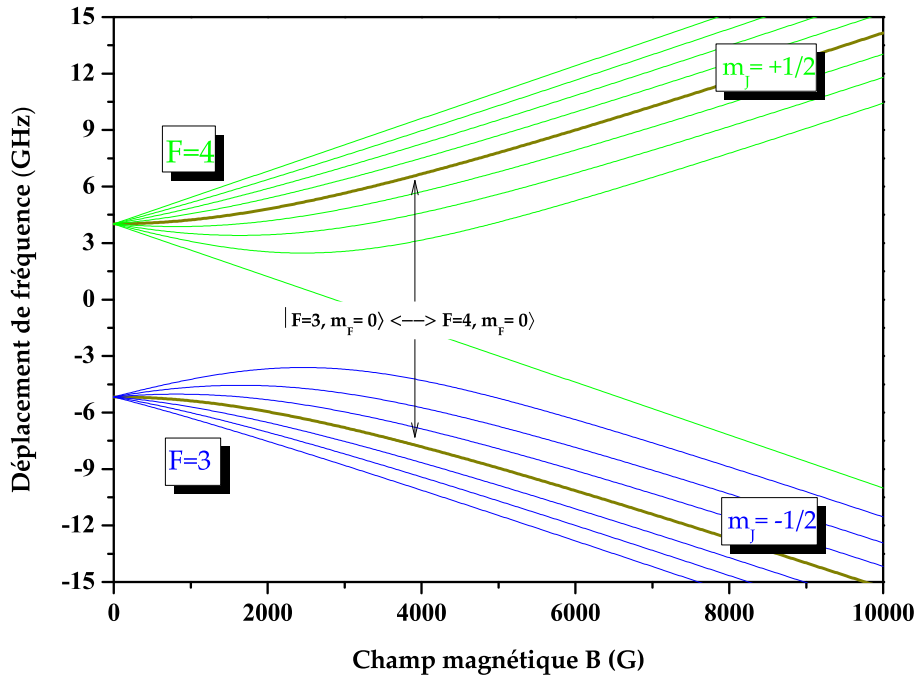


FIGURE 1.2 – Déplacement de fréquence des niveaux hyperfins de l'état $6^2S_{1/2}$ en fonction du champ magnétique. Les sous-états Zeeman de la transition d'horloge sont indiqués en trait plein.

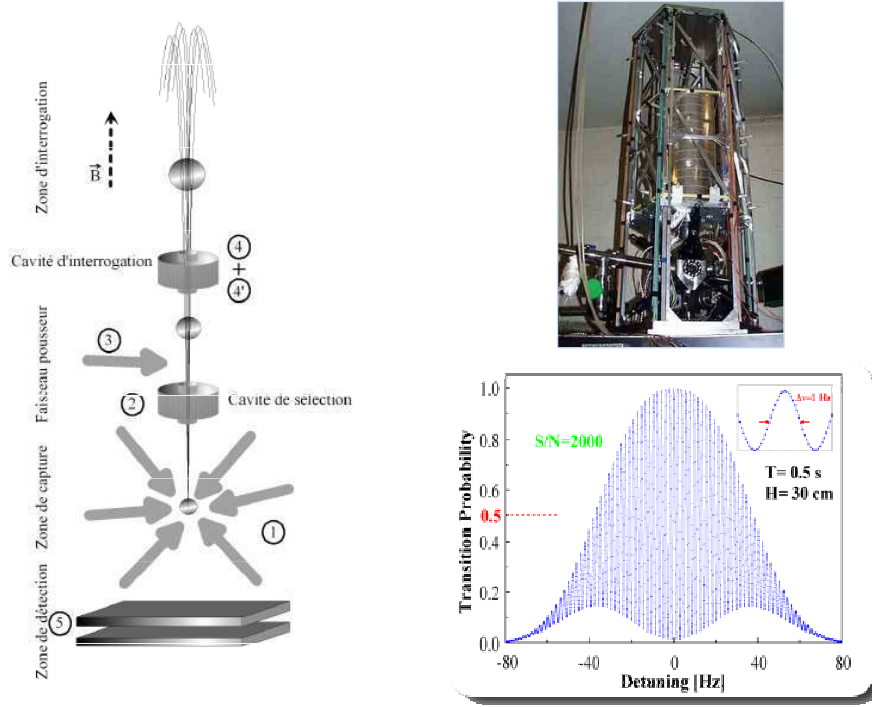


FIGURE 1.3 – Fontaine à atomes froids de ^{133}Cs pour l'interrogation de la transition d'horloge de l'état $6^2S_{1/2}$ entre les sous niveaux Zeeman $|F = 3, m_F = 0\rangle$ et $|F = 4, m_F = 0\rangle$. La transition est observée à l'aide de la spectroscopie par franges de Ramsey. Principe de fonctionnement de la fontaine : (1) atomes capturés dans une mélasse optique, (2) passage dans une cavité de sélection pour préparer l'état atomique, (3) faisceau pousseur qui chasse les atomes non préparés, (4) et (4') double passage dans une cavité d'interrogation micro-onde à 9.2 GHz et (5) faisceaux de détection du signal d'horloge. Schéma extrait de la référence [8].

l'enceinte de piégeage des atomes (rayonnement du corps noir équivalent à un effet Stark statique) affecte la transition d'horloge au niveau relatif plus élevé de l'ordre de $-2 \cdot 10^{-14}$ avec une incertitude de l'ordre de $2.5 \cdot 10^{-16}$ [8]. A l'Observatoire de Paris au SYRTE, la fréquence de la transition atomique du ^{133}Cs à 9.2 GHz est aujourd'hui mesurée avec une incertitude relative inférieure à $4 \cdot 10^{-16}$.

1.2 Structure magnétique d'un alcalino-terreux (^{87}Sr)

La structure magnétique d'un atome possédant 2 électrons de valence est plus difficile à modéliser. Comme les laboratoires de recherche Temps-Fréquence souhaitent développer de nouveaux étalons de fréquence sur des transitions atomiques à plusieurs centaines de THz, les alcalino-terreux ont été sélectionnés pour leurs propriétés métrologiques, notamment pour leur transition d'horloge très fine inférieure à 100 mHz. En revanche, si les alcalins ont été vigoureusement étudiés pendant très longtemps, la structure magnétique des alcalino-terreux est nettement moins bien connue. Le premier objectif fondamental est donc de réaliser une analyse poussée de la structure électronique et nucléaire de ces espèces atomiques pour en extraire des informations sur la sensibilité de la transition d'horloge au champ magnétique.

Si la transition d'horloge n'a pas été vraiment étudiée, la configuration de type 5s5p qui correspond à celle du strontium ^{87}Sr , du groupe II du tableau périodique des éléments chimiques, a été explorée à travers les travaux théoriques de Breit-Wills [10] et de Lurio [6, 11]. On a alors recours à ce que l'on appelle le couplage intermédiaire entre états atomiques. En combinant un couplage de structure fine avec la structure hyperfine des premiers états excités, on explique pourquoi la transition d'horloge, habituellement interdite à tous les ordres du développement multipolaire du fait de son caractère $J = 0 \mapsto J = 0$, est en réalité faiblement permise par couplage dipolaire électrique dans le cas de l'isotope fermionique ^{87}Sr .

1.2.1 Influence du spin nucléaire

Le couplage spin-orbite seul conserve le moment cinétique total \vec{J} , on voit que la transition d'horloge est encore strictement interdite par les règles de sélection car elle reste une transition $J = 0 \mapsto J = 0$. C'est notamment pour cette raison que la transition d'horloge pour les isotopes bosoniques du Sr ne peut être réalisée qu'en ajoutant un couplage artificiel. Dans le cas de l'isotope ^{87}Sr , ce couplage supplémentaire intervient avec la présence d'un spin nucléaire qui vaut $I = 9/2$. L'interaction hyperfine entre 3P_1 et 3P_0 du ^{87}Sr via le couplage spin-orbite par 1P_1 induit une durée de vie de l'état fermionique 3P_0 de l'ordre de 100 s. La transition d'horloge de l'isotope bosonique ^{88}Sr n'est possible que par un couplage à deux photons du type E1M1 avec une durée de vie approchant les 1000 ans [12]. Nous reviendrons sur la possibilité d'observer cette transition à deux photons dans le chapitre II.

1.2.2 La théorie de Breit-Wills en couplage intermédiaire

Dans la configuration 5s5p, les deux électrons périphériques sont un électron s et un électron p. En prenant en compte la structure fine dans l'hamiltonien de l'atome, on peut d'abord obtenir la levée de la dégénérescence et faire apparaître trois niveaux de structure fine. L'interaction spin-orbite provient du fait que les électrons périphériques,

possédant un moment magnétique de spin, interagissent avec le champ électrostatique créé par le noyau (ou plus exactement avec le champ magnétique apparaissant du fait de leur mouvement dans le champ électrique) [13]. Le couplage spin-orbite peut-être évalué de deux façons : Les deux électrons sont d'abord traités de manière globale et caractérisés par leur moment cinétique orbital total \vec{L} et leur moment de spin total \vec{S} avec le moment cinétique électronique total $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$. En fonction de la valeur du spin total S, on fait apparaître le spectre de structure fine en couplage (LS) introduit par la notation $^{2S+1}L_J$ avec un niveau singulet noté 1P_1 (S=0) et trois niveaux triplets notés 3P_0 , 3P_1 et 3P_2 avec (S=1). Les électrons peuvent aussi agir chacun individuellement avec le champ magnétique du noyau induit par le spin nucléaire. On parle alors de couplage (jj). Les nombres quantiques nécessaires à cette description dépendent des moments cinétiques individuels de chaque électron $\vec{j}_i = \vec{l}_i + \vec{s}_i$ ($i = 1, 2$) et du moment cinétique total $\vec{J} = \vec{j}_1 + \vec{j}_2$. Dans le cas du ^{87}Sr , le couplage intermédiaire est essentiellement de type (LS)

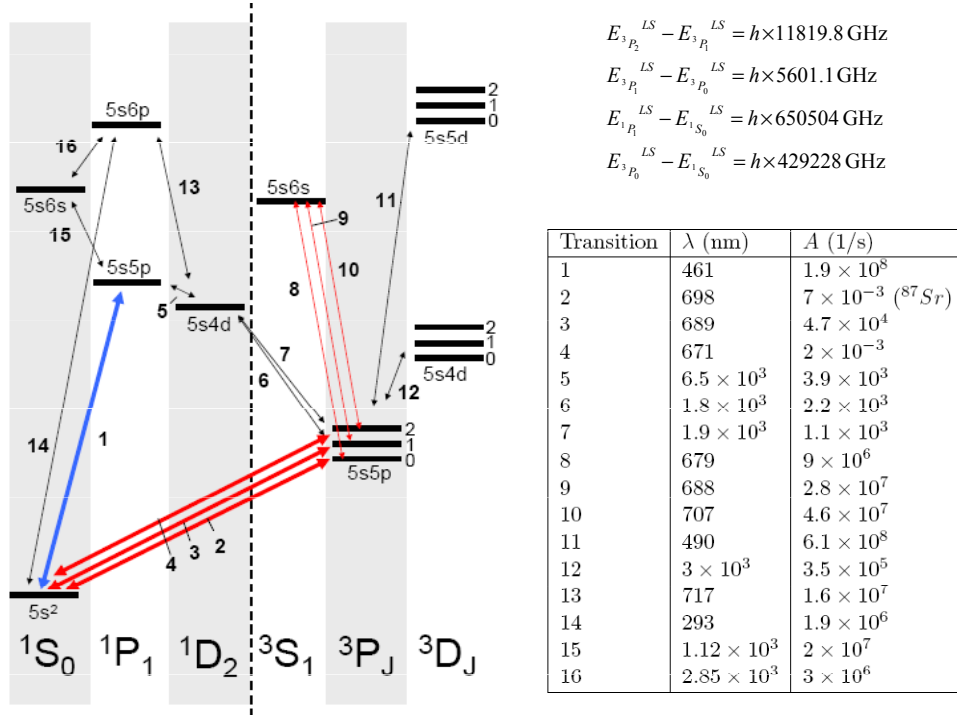


FIGURE 1.4 – Longueurs d'ondes et coefficients d'Einstein des principales transitions atomiques du ^{87}Sr d'après la référence [14]. Les transitions qui nous intéressent sont les transitions indiquées par les numéros 1, 2, 3 et 4. Les écarts en énergie de structure fine sont également indiqués.

avec une petite contamination de type (jj). Le couplage (jj) permet notamment d'exprimer les termes d'interaction hyperfine [10, 6]. Breit et Wills développent les fonctions d'ondes électroniques sous la forme d'une combinaison linéaire des états propres purement (LS) (ou (jj)) pondérée par des coefficients de couplage mesurés expérimentalement à partir de la durée de vie des niveaux excités. Afin de décrire le système à 2 électrons du strontium, on développe ici les fonctions d'onde perturbées d'abord sous l'effet d'un pur couplage spin-orbite (LS) dans la base des états propres $|^{2S+1}L_J\rangle$ de la manière suivante :

$$\begin{aligned} |^3P_0\rangle &= |^3P_0^{LS}\rangle \\ |^3P_1\rangle &= \alpha|^3P_1^{LS}\rangle + \beta|^1P_1^{LS}\rangle \\ |^3P_2\rangle &= |^3P_2^{LS}\rangle \\ |^1P_1\rangle &= -\beta|^3P_1^{LS}\rangle + \alpha|^1P_1^{LS}\rangle \end{aligned} \quad (1.9)$$

Les coefficients de couplage spin-orbite α et β vérifient des conditions d'orthogonalité et de normalisation. Les valeurs α et β peuvent être déterminées à partir des mesures expérimentales des temps de vie des états excités 1P_1 et 3P_1 [13]. Ces coefficients ($\alpha =$

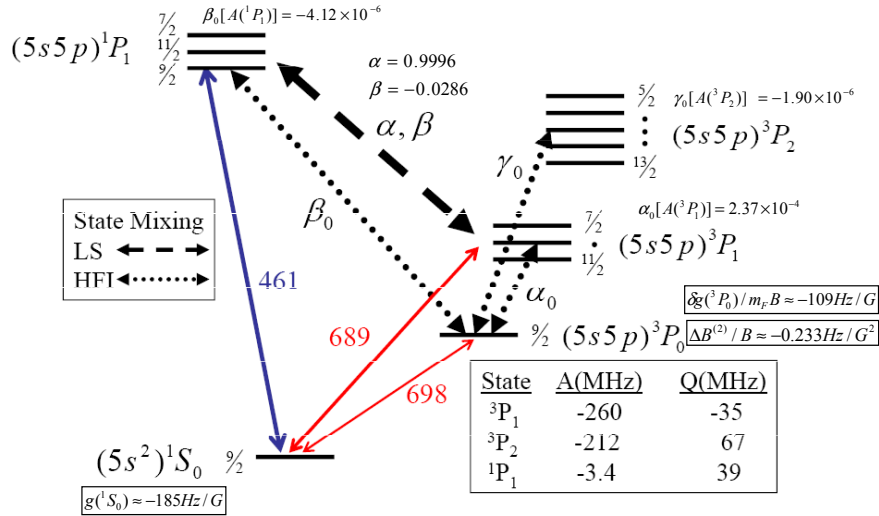


FIGURE 1.5 – Schéma des interactions hyperfines $\alpha_0, \beta_0, \gamma_0$ et du couplage spin-orbite α, β entre les différents niveaux d'énergie de l'atome. Les valeurs des facteurs de Landé des états 1S_0 et 3P_0 de la transition d'horloge ainsi que la correction linéaire δg et quadratique $\Delta_B^{(2)}$ sont indiquées dans les encadrés. On indique également la valeur des éléments dipolaire magnétique $A(^{2S+1}L_J)$ et quadrupolaire électrique $Q(^{2S+1}L_J)$.

$ ^1P_1, F', m_F\rangle$	$ ^3P_1, F', m_F\rangle$	$ ^3P_0, F, m_F\rangle$
$E_{^1P_1}^{\text{LS}} + Z_{^1P_1}^{\text{LS}}$	$\alpha\beta\sum_{F'}\left(\begin{array}{c} \langle ^1P_1^{\text{LS}}, F' H_Z ^1P_1^{\text{LS}}, F' \rangle \\ - \langle ^3P_1^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle \end{array}\right)$	$-\beta\sum_{F'}\langle ^3P_0^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle$
$\alpha\beta\sum_{F'}\left(\begin{array}{c} \langle ^1P_1^{\text{LS}}, F' H_Z ^1P_1^{\text{LS}}, F' \rangle \\ - \langle ^3P_1^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle \end{array}\right)$	$E_{^3P_1}^{\text{LS}} + Z_{^3P_1}^{\text{LS}}$	$\alpha\sum_{F'}\langle ^3P_0^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle$
$-\beta\sum_{F'}\langle ^3P_0^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle$	$\alpha\sum_{F'}\langle ^3P_0^{\text{LS}}, F' H_Z ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle$	$E_{^3P_0}^{\text{LS}} + Z_{^3P_0}^{\text{LS}}$
$ ^1P_1, F', m_F\rangle$	$ ^3P_1, F', m_F\rangle$	$ ^3P_0, F, m_F\rangle$

$$\begin{aligned}
Z_{^3P_0}^{\text{LS}} &= \langle ^3P_0^{\text{LS}}, F | H_Z | ^3P_0^{\text{LS}}, F \rangle + 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0)\langle ^3P_0^{\text{LS}}, F | H_Z | ^3P_1^{\text{LS}}, F \rangle \\
Z_{^3P_1}^{\text{LS}} &= \sum_{F'}\left(\alpha^2\langle ^3P_1^{\text{LS}}, F' | H_Z | ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle + \beta^2\langle ^1P_1^{\text{LS}}, F' | H_Z | ^1P_1^{\text{LS}}, F' \rangle\right) \\
Z_{^1P_1}^{\text{LS}} &= \sum_{F'}\left(\alpha^2\langle ^1P_1^{\text{LS}}, F' | H_Z | ^1P_1^{\text{LS}}, F' \rangle + \beta^2\langle ^3P_1^{\text{LS}}, F' | H_Z | ^3P_1^{\text{LS}}, F' \rangle\right)
\end{aligned}$$

FIGURE 1.6 – Matrice décrivant la structure énergétique perturbée par le champ magnétique de l'état 3P_0 et des états 1P_1 et 3P_1 dans la base $\{|^{2S+1}L_J, F, m_F\rangle\}$.

0.9996 et $\beta = -0.0286$) assurent le mélange des états singulet et triplet du strontium.

La structure hyperfine apparaît avec l'influence du spin nucléaire sur les électrons périphériques. La structure fine du strontium étant décrite par le couplage intermédiaire de Breit de Wills, on va alors ajouter les interactions hyperfines de manière perturbative. Le hamiltonien hyperfin H de l'atome contient un terme d'interaction dipolaire magnétique $A(^{2S+1}L_J)$, un terme quadrupolaire électrique $Q(^{2S+1}L_J)$ et l'effet du champ magnétique sur les niveaux en énergie des différents états atomiques. Le hamiltonien s'écrit dans ce cadre :

$$\begin{aligned}
H &= H_A + H_Q + H_Z \\
H_A &= A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \vec{I} \cdot \vec{J} \\
H_Q &= Q(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \frac{\frac{3}{2} \vec{I} \cdot \vec{J} (2 \vec{I} \cdot \vec{J} + 1) - IJ(I+1)(J+1)}{2IJ(2J-1)(2I-1)} \\
H_Z &= g_J \mu_B B / \hbar \cdot J_Z - g_I \mu_B B / \hbar \cdot I_Z
\end{aligned} \tag{1.10}$$

Dans la base des états propres $|F, m_F\rangle$ choisie par la référence [6], la partie $H_A + H_Q$ de l'hamiltonien d'interaction est diagonal en F et ne couple donc que les niveaux ayant le même moment cinétique total. Le niveau 3P_0 ayant une seule composante hyperfine $F=I=9/2$, il ne se retrouve couplé aux autres niveaux que par leurs composantes hyperfines $F=9/2$. On décrit cette interaction hyperfine qui mélange l'état 3P_0 avec les états $^1P_1, ^3P_1, ^3P_2$ sous la forme suivante :

$$|^3P_0\rangle \equiv |^3P_0^{LS}\rangle + \alpha_0|^3P_1\rangle + \beta_0|^1P_1\rangle + \gamma_0|^3P_2^{LS}\rangle \quad (1.11)$$

On remarque ici que la transition d'horloge qui nous intéresse $^1S_0 \mapsto ^3P_0$ va être faiblement autorisée par couplage dipolaire électrique grâce à la présence du terme en $\beta_0|^1P_1\rangle$, le seul à être couplé au niveau fondamental par les règles de sélection. Les coefficients de mélange hyperfin α_0 , β_0 , et γ_0 (2×10^{-4} , -4×10^{-6} , et -1×10^{-6}) dépendent de l'écart hyperfin des états $^3P_1, ^3P_2$ et de la structure fine des états 3P . Ils sont calculés dans l'article **Phys. Rev. A 76, 022510 (2007)** à partir de la référence [6] à l'aide des relations suivantes :

$$\begin{aligned} \alpha_0 &= \frac{\langle ^3P_1, F=I | H_A | ^3P_0^{LS}, F=I \rangle}{E_{^3P_0}^{LS} - E_{^3P_1}^{LS}} \\ \beta_0 &= \frac{\langle ^1P_1, F=I | H_A | ^3P_0^{LS}, F=I \rangle}{E_{^3P_0}^{LS} - E_{^1P_1}^{LS}} \\ \gamma_0 &= \frac{\langle ^3P_2, F=I | H_Q | ^3P_0^{LS}, F=I \rangle}{E_{^3P_0}^{LS} - E_{^3P_2}^{LS}} \end{aligned} \quad (1.12)$$

où les écarts en énergie de la structure fine sont définis par $E_{^3P_0}^{LS}$, $E_{^3P_1}^{LS}$ et $E_{^3P_2}^{LS}$ et rapportés sur la figure Fig. 1.4. La matrice complète des états d'énergie qui décrit l'intégralité des couplages retenus avec le hamiltonien Eq. 1.10 est établie pour le strontium dans l'annexe B.

1.2.3 La formule de Breit-Rabi de l'état excité 3P_0

Au cours de mon travail sur la structure magnétique du strontium, j'ai construit un modèle atomique des énergies de structure fine, hyperfines et magnétiques à partir de la théorie du couplage intermédiaire de Breit-Wills afin d'évaluer les déplacements de fréquence associés à chaque sous état Zeeman caractérisant la résonance d'horloge. Le modèle présenté intégralement dans l'annexe B contient notamment les interactions hyperfines, quadrupolaires et Zeeman en champ intermédiaire pour les états $^3P_0, ^3P_1, ^1P_1$ mais néglige la contribution de l'état 3P_2 qui ne change rien sur l'évaluation de l'éclatement Zeeman pour des champs aussi intenses que 10^4 G. Il suffit alors de diagonaliser la matrice complète de l'annexe B.

Comme c'est principalement le couplage hyperfin de l'état 3P_1 avec l'état 3P_0 du ^{87}Sr qui induit une modification du facteur de Landé et une sensibilité au champ magnétique pour la transition d'horloge, on peut raisonnablement effectuer un calcul perturbatif à l'aide de l'équation Eq. 1.11 afin d'obtenir une formule analytique décrivant la sensibilité

magnétique de la transition $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$. Cette formule est d'abord obtenue à partir de la diagonalisation de la matrice en énergie présentée sur la figure Fig. 1.6. Le résultat est présenté dans l'article **Phys. Rev. A** **76**, 022510 (2007).

Pour obtenir une formule simple analogue à celle de Breit-Rabi décrivant l'effet de l'interaction magnétique sur l'état métastable 3P_0 par l'intermédiaire de l'état excité 3P_1 , la matrice est réduite à l'expression suivante (avec $F' = F \pm 1, F$) :

$$\begin{pmatrix} E_{3P_1}^{LS} + \sum_{F'} \begin{pmatrix} \alpha^2 \langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle \\ + \beta^2 \langle ^1P_1^{LS}, F' | H_z | ^1P_1^{LS}, F' \rangle \end{pmatrix} & \alpha \sum_{F'} \sqrt{|\langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle|^2} \\ \alpha \sum_{F'} \sqrt{|\langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle|^2} & E_{3P_0}^{LS} + \langle ^3P_0^{LS}, F | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle \\ & + 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle ^3P_1^{LS}, F | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle \end{pmatrix} \quad (1.13)$$

Les éléments H_z de couplage Zeeman entre états atomiques sont publiés dans notre article **Phys. Rev. A** **76**, 022510 (2007). On introduit les définitions suivantes :

$$\begin{aligned} \tilde{E}_{3P_0}^{LS} &= E_{3P_0}^{LS} + Z_{3P_0}^{LS} \\ \tilde{E}_{3P_1}^{LS} &= E_{3P_1}^{LS} + Z_{3P_1}^{LS} \end{aligned} \quad (1.14)$$

avec

$$\begin{aligned} Z_{3P_0}^{LS} &= \langle ^3P_0^{LS}, F | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle + 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle ^3P_1^{LS}, F | H_z | ^3P_0^{LS}, F \rangle \\ Z_{3P_1}^{LS} &= \sum_{F'} \alpha^2 \langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle + \sum_{F'} \beta^2 \langle ^1P_1^{LS}, F' | H_z | ^1P_1^{LS}, F' \rangle \end{aligned} \quad (1.15)$$

Les valeurs propres en énergie des états perturbés 3P_0 and 3P_1 sont alors établies par analogie avec la formule de Breit-Rabi pour un alcalin :

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left[(\tilde{E}_{3P_0}^{LS} + \tilde{E}_{3P_1}^{LS}) \pm (\tilde{E}_{3P_0}^{LS} - \tilde{E}_{3P_1}^{LS}) \sqrt{1 + 4 \frac{\sum_{F'} \alpha^2 |\langle ^3P_0^{LS}, F | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle|^2}{(\tilde{E}_{3P_0}^{LS} - \tilde{E}_{3P_1}^{LS})^2}} \right] \quad (1.16)$$

Le signe (+)(-) détermine respectivement la position en énergie de 3P_0 et 3P_1 perturbée par le champ magnétique. En développant en perturbation l'équation Eq. B.10, on peut évaluer la correction du second ordre en champ magnétique :

$$\delta E \approx \frac{\sum_{F'} \alpha^2 |\langle ^3P_0^{LS}, F | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle|^2}{(\tilde{E}_{3P_0}^{LS} - \tilde{E}_{3P_1}^{LS})} \quad (1.17)$$

La théorie de Breit-Wills reste néanmoins semi-empirique. L'évaluation des termes linéaire et quadratique Zeeman par cette approche est fortement dépendante des valeurs des coefficients de mélange $\alpha(\alpha_0)$ et $\beta(\beta_0)$. En l'absence de mélange entre états hyperfins excités, les

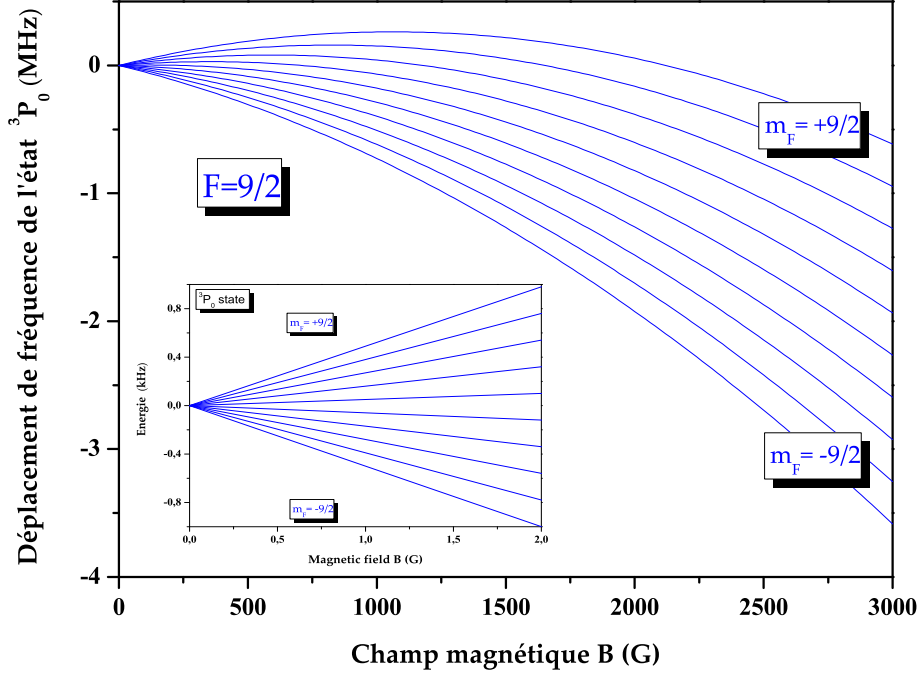


FIGURE 1.7 – Déplacement de fréquence de l'état 3P_0 en fonction du champ magnétique à partir de l'équation Eq. B.10. Le déplacement magnétique linéaire vaut $\delta g/m_F B = -109 \text{ Hz/G}$ et la correction quadratique vaut $\Delta^{(2)}/B^2 = -0.233 \text{ Hz/G}^2$.

facteurs de Landé de 3P_0 et 1S_0 sont identiques (en supposant les effets diamagnétiques négligeables), et sont calculés à partir du moment magnétique nucléaire du ^{87}Sr , $\mu_I = -1.0924(7)\mu_N$, où μ_N est le magnéton nucléaire. Comme l'interaction hyperfine entraîne une modification de la fonction d'onde associée à l'état 3P_0 , un terme de correction sur le facteur de Landé (aussi appelé facteur de Landé différentiel) δg apparaît.

Ce terme peut être interprété comme un effet de correction paramagnétique due à la perturbation de l'orbitale électronique des états triplet. Le facteur de Landé différentiel δg sur l'état 3P_0 est donné par l'expression suivante :

$$\delta g = -2(\alpha_0\alpha - \beta_0\beta) \frac{\langle ^3P_0^{LS}, m_F | H_Z | ^3P_1^{LS}, F = I, m_F \rangle}{m_F \mu_B B} + O(\alpha_0^2, \beta_0^2, \gamma_0^2 \dots) \quad (1.18)$$

En utilisant les éléments de matrice du ^{87}Sr ($F=9/2$), on trouve $\langle ^3P_0^{LS}, m_F | H_Z | ^3P_1^{LS}, F = \frac{9}{2}, m_F \rangle = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{2}{33}} m_F \mu_B B$ qui entraîne une modification de plus de $\sim 60\%$ du facteur de Landé $g_P = g_S + \delta g$ soit de l'ordre de -109 Hz/G pour chaque sous-niveau m_F . On détermine de

la même manière la valeur de la correction quadratique :

$$\Delta_B^{(2)} = -\frac{2\alpha^2(g_l - g_s)^2\mu_B^2}{3(E_{3P_1}^{LS} - E_{3P_0}^{LS})}B^2 \quad (1.19)$$

A partir de l'équation Eq. 1.19, on trouve que la correction Zeeman du second ordre en Hz vaut $\Delta_B^{(2)} = -0.233B^2$ (avec B en Gauss).

1.2.4 Influence du terme quadrupolaire et de la fonction d'onde radiale en configuration (sp)

La théorie de la structure magnétique de ^{87}Sr développée à partir du couplage intermédiaire de Breit-Wills permet de prendre en compte l'influence des termes de couplage électromagnétique d'ordre supérieur comme la présence d'un terme quadrupolaire électrique (car la distribution de charges du noyau atomique pour $I > 1/2$ n'est plus sphérique). Au cours de ce travail, j'ai vérifié que ce terme ne jouait aucun rôle sur l'évaluation théorique du facteur de Landé de l'état 3P_0 de la transition d'horloge qui interagit avec les états excités triplets en diagonalisant numériquement une matrice en énergie étendue aux états 1P_1 , 3P_1 et 3P_2 dans la base des états propres $\{|F, m_F\rangle\}$.

En revanche, comme le montre le tableau Tab.1.1 issu de l'article **Phys. Rev. A** **76**,

Valeurs retenues pour le calcul $\alpha = 0.9996$ $\beta = -0.0286(3)$					
Calc.	α_0 $\times 10^{-4}$	β_0 $\times 10^{-6}$	τ^{3P_0} (s)	$\delta g/m_F$ (Hz/G)	$A(^1P_1)$ (MHz)
BW	2.37(1)	-4.12(1)	152(2)	-109.1(1)	-32.7(2)
MBW I	2.56(1)	-5.5(1)	110(1)	-117.9(5)	-3.4(4) [15]
MBW II	2.36(1)	-3.3(1)	179(5)	-108.8(4) [16]	-15.4(5)

TABLE 1.1 – *Estimations des valeurs de δg et de la durée de vie τ^{3P_0} pour le ^{87}Sr avec une théorie de Breit-Wills modifiée (MBW). Les incertitudes sont estimées à partir des mesures expérimentales des durées de vie des états excités et des valeurs mesurées des écarts hyperfins. Les valeurs indiquées en gras servent à déterminer les autres quantités du tableau.*

022510 (2007), il existe un écart important entre l'évaluation théorique du terme de couplage hyperfin $A(^1P_1)$ par rapport à l'unique valeur expérimentale rapportée par la référence [15]. Pour tenter de corriger cet écart, nous avons essayé au JILA d'élargir la théorie de Breit-Wills en introduisant une interaction de configuration dans le calcul des coefficients intervenant dans les fonctions d'ondes radiales pour un électron s et pour un électron p. Cela conduit à une théorie Breit-Wills modifiée appelée ici MBW. Il faut dans ce cas reprendre le calcul de Lurio, Mandel et Novick [6] en modifiant les termes d'interaction dipolaire et quadrupolaire en suivant la démarche de la référence [11]. Plusieurs

approches ont été appliquées pour essayer de comprendre l'origine de cet écart. Les valeurs indiquées en gras dans le tableau Tab.1.1 servent à évaluer les autres quantités. L'approche MBWI utilise les mesures expérimentales disponibles de tous les écarts hyperfins des états $^1P_1, ^3P_1, ^3P_2$ pour déterminer les coefficients de mélange puis la durée de vie de l'état 3P_0 et la correction δg . Dans le cadre de la méthode MBWII, on utilise la mesure expérimentale du facteur de Landé différentiel δg effectuée avec le groupe du JILA pour contraindre la valeur du coefficient α_0 (car δg dépend fortement du couplage $\alpha_0\alpha$ et très peu de $\beta_0\beta$). Cela a permis de réduire d'un facteur 2 l'écart entre la valeur de $A(^1P_1)$ mesurée par [15] et son estimation théorique en couplage intermédiaire.

Comme il reste un désaccord significatif entre la théorie et les mesures expérimentales, cela nous oblige à considérer aujourd'hui que la méthode de Breit-Wills est inadaptée pour une telle configuration électronique ou bien que les mesures expérimentales des couplages hyperfins ou l'évaluation du facteur de Landé de l'état fondamental sont erronées. Notons que la mesure expérimentale de la constante hyperfine de l'état 1P_1 repose sur la spectroscopie par croisement de niveaux qui souffre du recouvrement entre niveaux hyperfins et d'une importante contamination du spectre de ^{87}Sr par les transitions induites sur l'isotope bosonique ^{88}Sr . L'ensemble des résultats (MBW I et MBW II) est discuté dans l'article **Phys. Rev. A** **76**, 022510 (2007).

1.3 Observation de la transition d'horloge optique $^1S_0 \mapsto ^3P_0$

De nombreuses espèces fermioniques comme les alcalino-terreux avec le magnésium (Mg), le calcium (Ca), les terres-rares comme l'ytterbium (Yb), ou un métal de transition comme le mercure (Hg) sont des candidats pour des étalons de fréquence optique de très haute exactitude. Les transitions sont observables dans le domaine visible à 698 nm pour le ^{87}Sr , à 578 nm pour le ^{171}Yb mais dans l'ultra-violet à 266 nm pour le ^{199}Hg . La caractérisation des effets systématiques qui perturbent la mesure de la fréquence est réalisée sur des atomes piégés dans des réseaux optiques dipolaires non dissipatifs [1].

L'horloge atomique à ^{87}Sr comprend 3 bancs optiques : un banc pour le refroidissement à 461 nm ($\Gamma_{461}/2\pi = 32 \text{ MHz}$) et le piégeage des atomes de Sr dans un PMO (piège magnéto-optique) standard à six faisceaux lasers, un banc pour la génération des faisceaux repompeurs à 707 nm et le faisceau sonde à 679 nm, et enfin un banc optique laser pour la transition d'intercombinaison à 689 nm ($\Gamma_{689}/2\pi = 7.5 \text{ kHz}$). Le dernier banc optique contient un laser ultra-stable (ou encore appelé oscillateur local) pour l'interrogation de la transition d'horloge à 698 nm ($\Gamma_{698}/2\pi = 10 \text{ mHz}$). Le laser de refroidissement à 461 nm permet de préparer le nuage d'atomes froids dans le PMO (voir Fig. 1.8). La longueur d'onde à 461 nm est générée à partir d'une diode "tapered amplifier" à 922 nm puis doublée en fréquence. Des jeux de modulateurs acousto-optiques accordent ensuite la fréquence de la lumière bleue pour le piégeage isotopique du ^{88}Sr ou du ^{87}Sr . Le jet d'atomes de ^{87}Sr qui forme le nuage par capture radiative est produit à partir d'un four chauffé à plusieurs centaines de degrés. Le jet atomique est ensuite refroidi transversalement par une

1.3. OBSERVATION DE LA TRANSITION D'HORLOGE OPTIQUE $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$

mélasse 2D puis décéléré par un ralentisseur Zeeman (une combinaison d'un faisceau laser polarisé circulairement σ^- et des bobines produisant un gradient de champ magnétique le long de la direction de propagation du jet thermique). Finalement, le nuage se forme à l'intersection des faisceaux du PMO comprenant des bobines de Helmholtz pour minimiser les fluctuations résiduelles de champ magnétique (voir Fig. 1.8). Approximativement 3000 atomes sont piégés à une température de $2.5 \mu\text{K}$. Toutefois, lors du refroidissement sur la transition bleue $^1S_0 \leftrightarrow ^1P_1$, des atomes sont perdus par émission spontanée via la voie de désexcitation $^1P_1 \rightarrow ^1D_2 \rightarrow ^3P_2$. Afin de contrer ce processus de fuite, un laser repompeur sur la transition $^3P_2 \leftrightarrow ^3S_1$ permet de forcer les atomes vers l'état 3P_1 qui retombent ensuite dans l'état fondamental dans le piège laser. Pour refroidir davantage le nuage atomique, la transition d'intercombinaison à 689 nm est mise à profit car avec une largeur étroite de 7.5 kHz, elle permet d'atteindre des températures Doppler de l'ordre du μK . Lorsque les atomes sont suffisamment ralentis, ils sont chargés dans un réseau optique à une dimension et très désaccordé vers le rouge comme le montrent les figures Fig. 1.9(a)

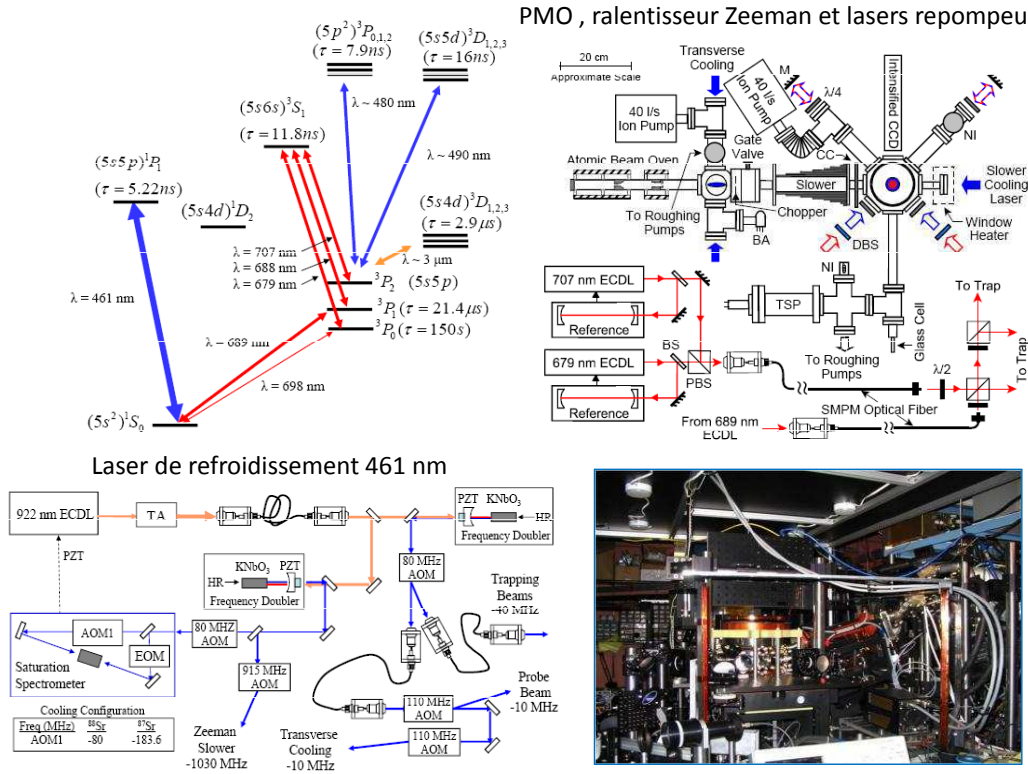


FIGURE 1.8 – Schéma des différentes transitions atomiques radiatives utilisées pour étudier le ^{87}Sr . Les bancs optiques de refroidissement et de piégeage du ^{87}Sr ou du ^{88}Sr dans un PMO sont également présentés [14, 16].

et (b).

1.3.1 Le laser ultra-stable à 698 nm

Réaliser alors la détection de la transition d'horloge avec une résolution en fréquence de l'ordre du Hz nécessite un laser d'interrogation de largeur spectrale du même ordre de grandeur. Il faut pour cela développer des diodes lasers asservies sur des cavités ultra-stables insensibles aux accélérations et au bruit accoustique. Tous ces bruits perturbent la cavité de référence en faisant varier la longueur optique de celle-ci. Afin de comparer les performances en fréquence de ces cavités d'interrogation, j'ai participé à la reconstruction d'une seconde cavité de référence. La réalisation de ces oscillateurs lasers repose sur les études de géométrie de cavités menées par M. Notcutt au JILA. Il a été démontré notamment qu'une structure verticale montée sur des points d'attache spécifiques permettait de compenser au premier ordre la variation de longueur optique de la cavité. Ce schéma est maintenant devenu standard et se développe dans la plupart des laboratoires de métrologie (PTB, NPL, SYRTE). Le laser ultra-stable repose sur une diode à semi-conducteur montée en cavité étendue de type Littman. Cette diode est pré-asservie sur une cavité de haute finesse 10000 par la technique de Pound-Drever-Hall (PDH) [14]. Cette stabilisation est accomplie par une réponse électronique sur le courant de la diode pour les corrections rapides et sur la cale piézo-électrique pour les corrections lentes. La lumière du laser pré-stabilisé est ensuite envoyée à travers un modulateur accousto-optique dont l'ordre 1 est dirigé à travers une fibre optique vers une cavité de très haute finesse 250000 fixée sur une plateforme antivibration. La longueur de la cavité en ULE (Ultra low Expansion) est de 7 cm. Un nouvel étage d'asservissement de type PDH est réalisé avec un modulateur électro-optique fonctionnant à 5 MHz. Environ 10 μ W est utilisé pour l'asservissement. La stabilisation finale de l'ensemble est faite par une réponse sur le modulateur accousto-optique du laser et sur une cale PZT contrôlant la longueur de la cavité de pré-stabilisation (voir un schéma plus détaillé dans la référence **Opt. Lett.** **32**, 641 (2007)). La cavité de haute finesse est fermée par des miroirs en ULE. La cavité, positionnée verticalement, repose sur une bague en zérodur qui est supportée par des pieds en Téflon. Une pompe ionique de 2l/s assure un vide de 10^{-6} Torr.

Afin d'évaluer la stabilité du laser d'interrogation, un battement hétérodyne entre deux cavités identiques a été effectué. Une dérive de quelques Hz/s du battement est réduit à moins de 50 mHz/s à l'aide d'un programme informatique qui compare la fréquence d'un maser à celle d'un laser femto-seconde asservie sur l'une des deux cavités ultra-stable. Sur une période de temps donnée, un ensemble de points dispersés autour d'une valeur moyenne est mesuré puis une fonction linéaire est utilisée pour l'interpolation. Le déplacement résultant en Hz/s qui décrit directement la dérive mécanique de la cavité laser au cours du temps est compensé par une rampe en fréquence de signe opposée. Cette compensation devient effective après quelques minutes de fonctionnement. Des largeurs de battement aussi étroites que 220 mHz ont pu être observées. La stabilité relative mesurée à l'aide de la variance d'Allan sur la figure Fig. 1.9(c) est de l'ordre de 10^{-15} à 1s. La

1.3. OBSERVATION DE LA TRANSITION D'HORLOGE OPTIQUE $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$

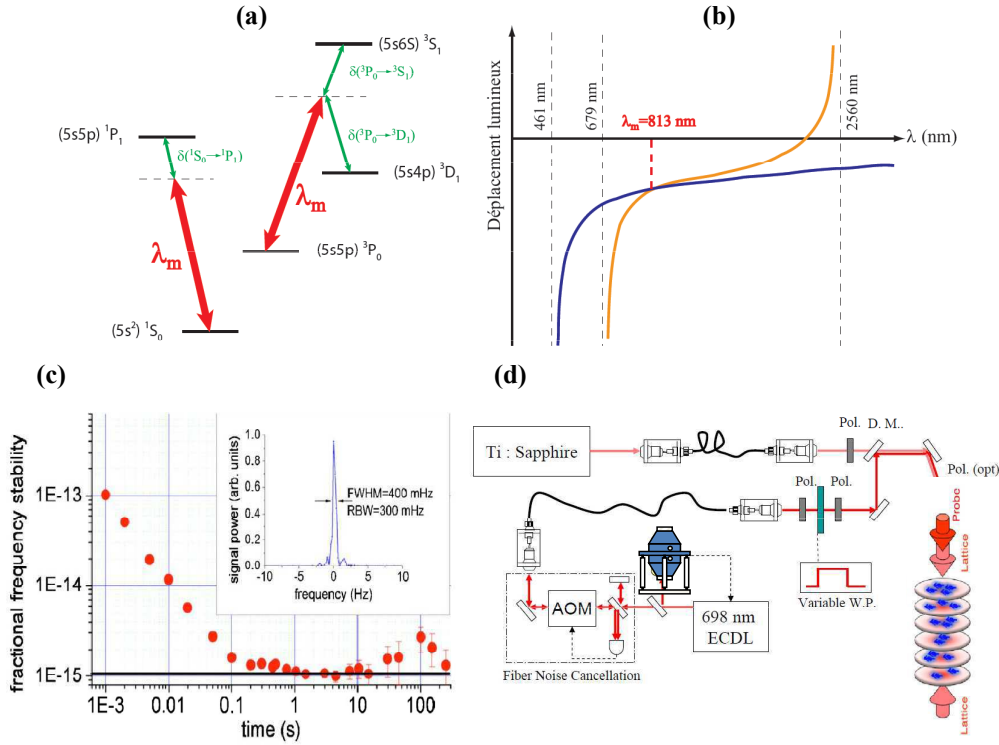


FIGURE 1.9 – (a) Niveaux contribuant majoritairement au déplacement lumineux de la fréquence d’horloge pour un laser de piégeage à la longueur d’onde magique λ_m d’après la référence [13]. (b) Allure du déplacement lumineux des deux niveaux d’horloge. Les courbes se croisent vers $\lambda_m = 813$ nm annulant le déplacement lumineux différentiel. (c) Variance d’Allan du laser ultra-stable à 698 nm pour interroger la transition d’horloge du ^{87}Sr . (d) Interrogation des atomes dans un réseau optique réalisé avec un Ti :Sapphire d’après la référence [16].

longueur de cohérence du laser a été aussi étudiée. Celui-ci ne se déphase pas de plus de 1 rad sur 2s à une fréquence de $4.3 \cdot 10^{14}$ Hz. Le spectre en bruit de fréquence de la référence **Opt. Lett.** **32**, 641 (2007) montre qu’en dessous de 5 Hz, la limitation provient essentiellement du bruit thermique des miroirs qui est un facteur 2 à 4 fois plus important que le bruit d’accélération. On peut alors réaliser l’interrogation des atomes dans le piège dipolaire formé par la rétro-réflexion d’un laser Ti :Sapphire de plusieurs Watts sur un miroir (voir Fig. 1.9(d)).

1.3.2 Reconstruction de la structure atomique Zeeman du ^{87}Sr : mesure de la correction δg du facteur de Landé de l'état 3P_0

Toute modélisation théorique demande une confrontation avec une évaluation expérimentale. Comme nous l'avions déjà signalé auparavant, la théorie quantique du couplage intermédiaire de Breit-Wills est mise en défaut lorsqu'il s'agit de déterminer de manière prédictive la valeur de la constante de couplage de l'état hyperfin $A(^1P_1)$ par rapport à l'unique valeur expérimentale existante. La première observation expérimentale de la résonance fermionique du ^{87}Sr avec une largeur de raie de l'ordre de 2 Hz a été effectuée en

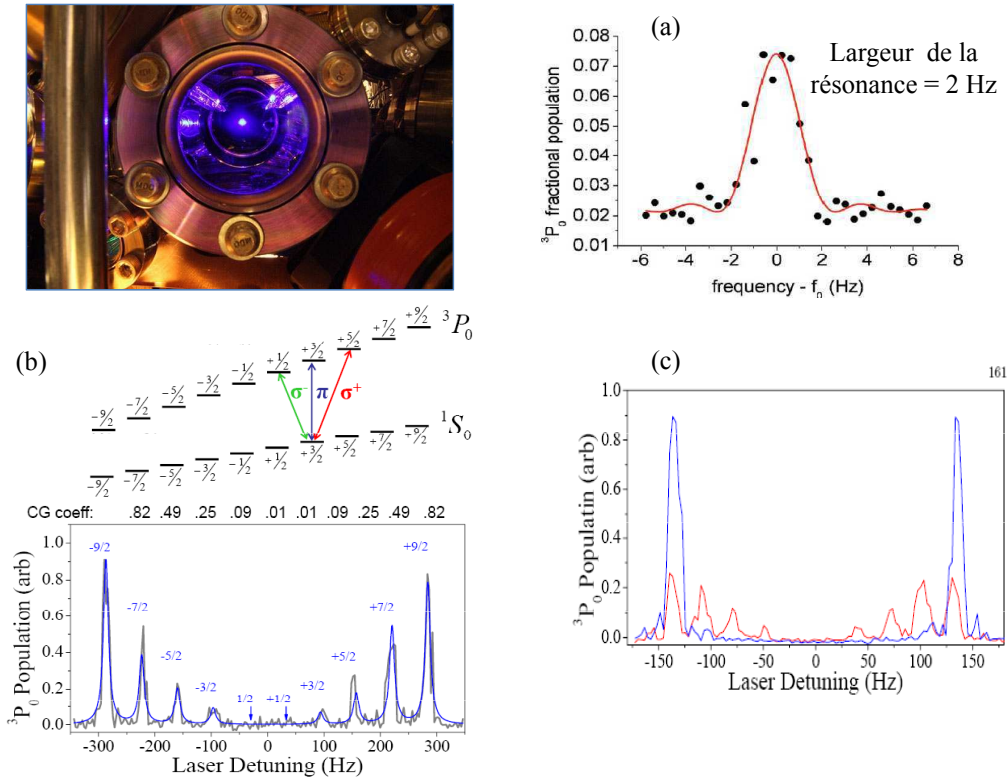


FIGURE 1.10 – Nuage d'atomes froids de ^{87}Sr dans un PMO. (a) Signal expérimental de la transition d'horloge de type Rabi après une impulsion de 480 ms appliquée avec le laser ultra-stable asservi sur la cavité de référence. (b) Levée de dégénérescence des états Zeeman en présence d'un faible champ magnétique directeur de 0.58 G. Chaque transition atomique possède une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 10 Hz. (c) Elimination des transitions Zeeman intermédiaires après pompage optique par l'intermédiaire du niveau relais 3P_1 ($F = 7/2$) dans un champ de 0.27 G. Les atomes sont pompés alors dans les deux sous-niveaux Zeeman extrêmes de l'état 3P_0 ($m_f = \pm 9/2$).

quantités	calcul	mesures 2007	mesures 2008
$\delta g/m_F$	-109.1(1) Hz/G [16]	-108.8(4) Hz/G [16]	-110.6(9) Hz/G [13]
$\Delta_B^{(2)}/B^2$	-0.233 Hz/G ² [16]	-0.233(5) Hz/G ² [17]	-0.249(17) Hz/G ² [13]

TABLE 1.2 – *Tableau des valeurs théoriques et expérimentales de la correction du facteur de Landé δg et du terme quadratique $\Delta_B^{(2)}$ de l'état 3P_0 .*

2006 au JILA comme le montre la figure Fig 1.10(a). En appliquant un champ magnétique directeur de quelques dizaines de Gauss sur le nuage d'atomes piégés, il suffit de balayer le laser sonde à 698 nm en polarisation π ou σ . Le spectre expérimental de reconstruction de la structure Zeeman en polarisation π est présenté dans la figure Fig. 1.10(b). Les mesures expérimentales réalisées par le JILA sur l'isotope fermionique ^{87}Sr sont rapportées dans le tableau Tab. 1.2 ainsi que les résultats du SYRTE sur l'espèce bosonique ^{88}Sr et fermionique ^{87}Sr à partir des références [13, 17, 18]. Nous avons obtenu, dans le meilleur des cas, un accord à mieux que 0.5% entre la mesure expérimentale et la valeur théorique du facteur de Landé différentiel calculé avec mon modèle de type Breit-Wills. On a pu également mettre en évidence une sélection des états Zeeman $m_F = \pm 9/2$ du spin nucléaire grâce au pompage optique appliqué à l'aide d'un laser repompeur en résonance avec le niveau hyperfin $F = 7/2$ de l'état 3P_1 . On obtient ainsi sur la figure Fig. 1.10(c) deux résonances atomiques de part et d'autre de la fréquence d'horloge avec un contraste 4 fois plus important. Cette dernière méthode permet par un asservissement électronique adapté de part et d'autre de chaque résonance de mesurer avec une bonne stabilité la fréquence d'horloge du ^{87}Sr en éliminant la correction linéaire en champ magnétique [13].

1.4 Habillage radiofréquence de spins nucléaires sur les isotopes ^{87}Sr , ^{171}Yb et ^{199}Hg

La structure fermionique du ^{87}Sr reste néanmoins sensible aux fluctuations de polarisation du laser qui interroge la transition d'horloge ainsi qu'aux fluctuations résiduelles du champ magnétique statique qui lève la dégénérescence des sous niveaux Zeeman. Les électrons se déplacent non seulement dans le champ électrique créé par le noyau atomique mais également dans le champ électrique créé par le laser de piégeage. Il en résulte plusieurs types de couplage qui induisent entre autres une polarisabilité vectorielle ($\propto m_F$), un tenseur de polarisabilité ($\propto m_F^2$) et une hyperpolarisabilité qui dépendent de l'orientation de la lumière de polarisation du laser de piégeage par rapport au champ magnétique directeur. Afin d'éliminer la plupart de ces contributions, plusieurs méthodes spectroscopiques d'excitation de la transition d'horloge ont été proposées ces dernières années. Elles reposent toutes sur l'utilisation de l'isotope bosonique ^{88}Sr du strontium qui ne possède pas de spin nucléaire $I = 0$. Malheureusement, l'absence de spin nucléaire fait disparaître la contamination hyperfine sur l'état 3P_0 qui active l'interrogation directe de la résonance atomique

par un laser. Pour remédier à ce problème, plusieurs groupes ont envisagé de réaliser un couplage artificiel entre états atomiques d'un isotope bosonique par l'intermédiaire de plusieurs champs lasers entre 1S_0 et 3P_0 . L'idée essentielle est d'appliquer, par exemple, le phénomène de résonance noire dans un schéma à 3 niveaux proposé au JILA en 2005, d'utiliser un système atomique à 4 niveaux et 3 lasers dans le groupe de Norval Forston à Washington ou d'appliquer un petit champ magnétique statique mélangeant les états atomiques entre 3P_1 et 3P_0 , solution proposée par le groupe des horloges optiques du NIST en 2006. Notons que seule cette dernière proposition a été couronnée de succès avec l'observation expérimentale de la première transition bosonique sur l'ytterbium ^{174}Yb . Nous

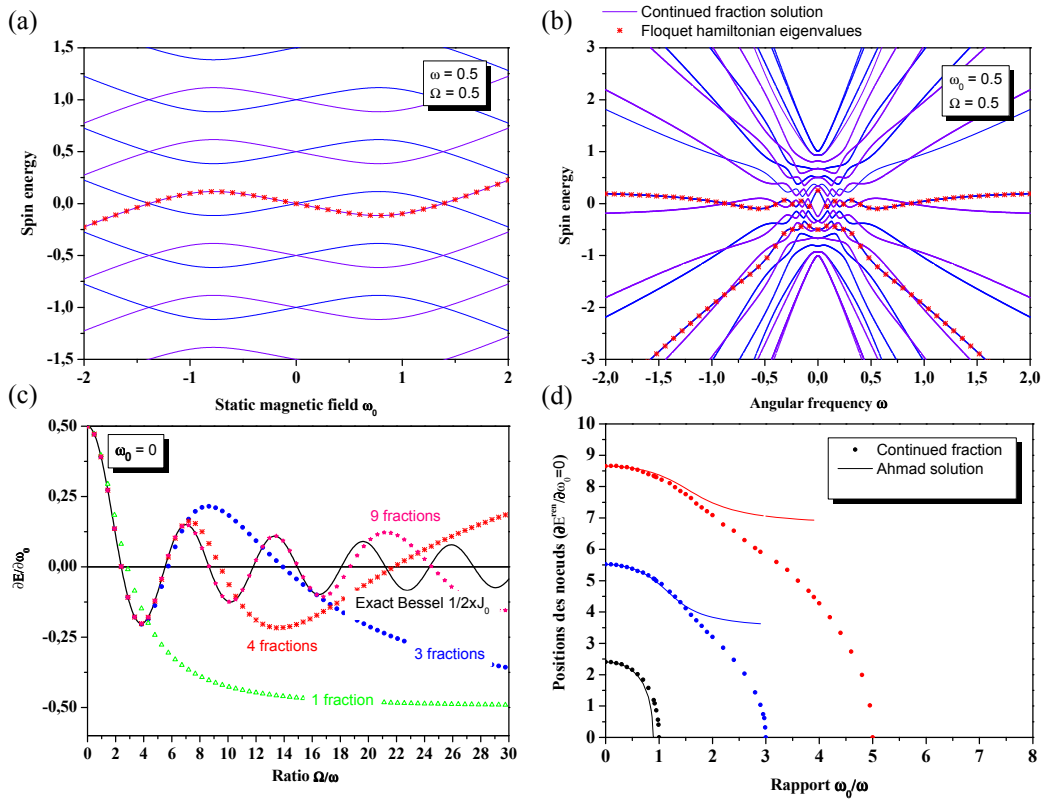


FIGURE 1.11 – Etude de l'habillage radiofréquence d'un spin 1/2 avec la méthode de la fraction continue. (a) Diagramme de Cohen-Tannoudji et Haroche en énergie d'un spin 1/2 plongé dans un champ radiofréquence en fonction du champ statique ω_0 . (b) Diagramme Autler et Townes en énergie d'un spin 1/2 en fonction de la pulsation radiofréquence ω . (c) Facteur gyromagnétique en champ statique nul en fonction de l'amplitude Ω du champ radiofréquence. On compare les résultats de la fraction continue avec une diagonalisation numérique d'un hamiltonien de Floquet [19]. (d) Déplacement Bloch-Siegert des noeuds en énergie $\partial E / \partial \omega_0 = 0$ en fonction de la valeur du champ statique ω_0 .

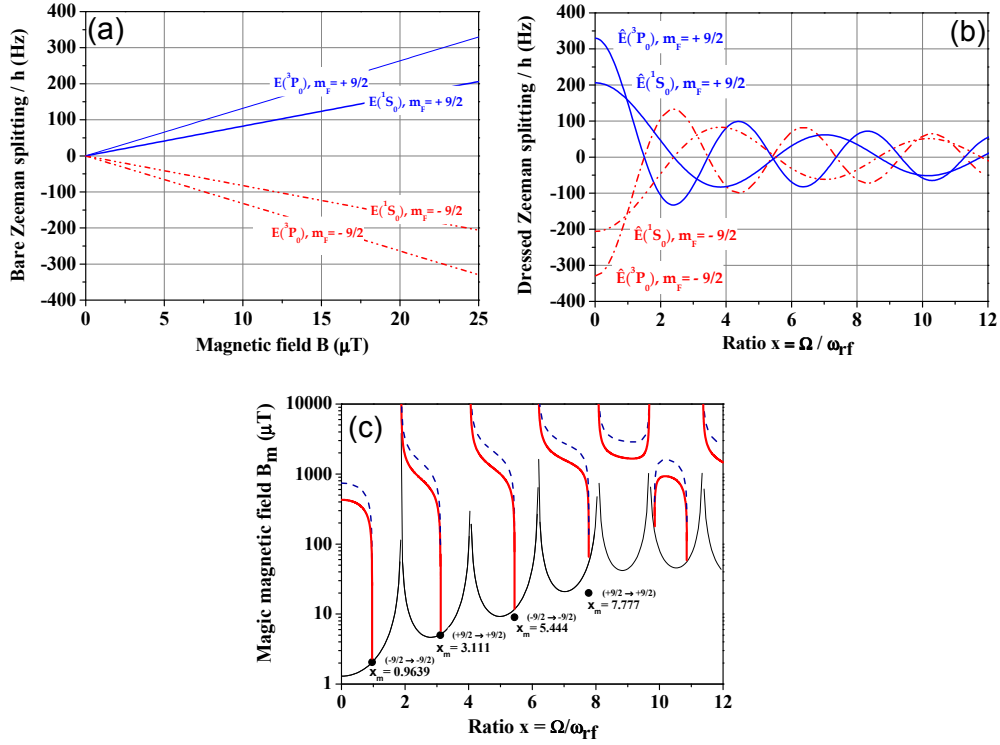


FIGURE 1.12 – Application au cas du ^{87}Sr . (a) Eclatement Zeeman des états magnétiques $m_F = \pm 9/2$ participant à la transition d'horloge du ^{87}Sr . (b) Renormalisation des états de spin sous l'effet d'une irradiation radio-fréquence dans un champ de $25 \mu\text{T}$ (250 mT). (c) Diagramme de transition vers la valeur du champ magnétique "magique" en fonction du rapport Ω/ω_{rf} qui permet la compensation simultanée du déplacement différentiel Zeeman $\Delta E^d = 0$ (courbe continue rouge) et de la dérivée première $\partial \Delta E^d / \partial B = 0$ (courbe en tireté bleu).

y reviendrons dans le chapitre suivant. Il était naturel dans ce contexte de chercher une alternative aux propositions précédentes tout en gardant une espèce fermionique.

1.4.1 Renormalisation du facteur de Landé et déplacement de Bloch-Siegert d'un spin

L'habillage des propriétés magnétiques d'un spin dans le domaine radiofréquence a été démontré à travers les études menées par C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure en 1970 [20]. Lorsque l'atome est plongé dans un champ radiofréquence oscillant rapidement et non résonant avec les différents sous-niveaux Zeeman, le facteur de Landé de l'atome subit une re-

normalisation, c'est à dire que l'atome voit une modification globale de sa susceptibilité magnétique. Bien que les processus d'absorption des photons soient virtuels, ils conduisent entre autres à un déplacement radiatif des niveaux d'énergie que l'on appelle effet Bloch-Siegert en radiofréquence ou déplacement lumineux en optique. Le calcul effectué par C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche, en champ magnétique très faible, repose sur l'utilisation de la seconde quantification de l'énergie du champ de photons qui entoure l'atome [20]. Dans notre cas, on s'intéresse au traitement semi-classique en présence d'un très grand nombre de photons. La généralisation de ce traitement à l'aide de la fraction continue sur une molécule à 2 niveaux d'énergie a été faite en 1955 par S.H. Autler et C.H. Townes [21]. Ils avaient alors étudié avec précision le déplacement des niveaux rovibrationnels de la molécule OCS sous l'effet de la radiofréquence. Le diagramme en énergie d'un spin 1/2 est présenté de manière différente : sur les figures Fig. 1.11(a) en fonction du champ statique ω_0 (diagramme de Cohen-Tannoudji et Haroche) et Fig. 1.11(b) en fonction de la pulsation radiofréquence ω (diagramme Autler et Townes). En champ statique très faible

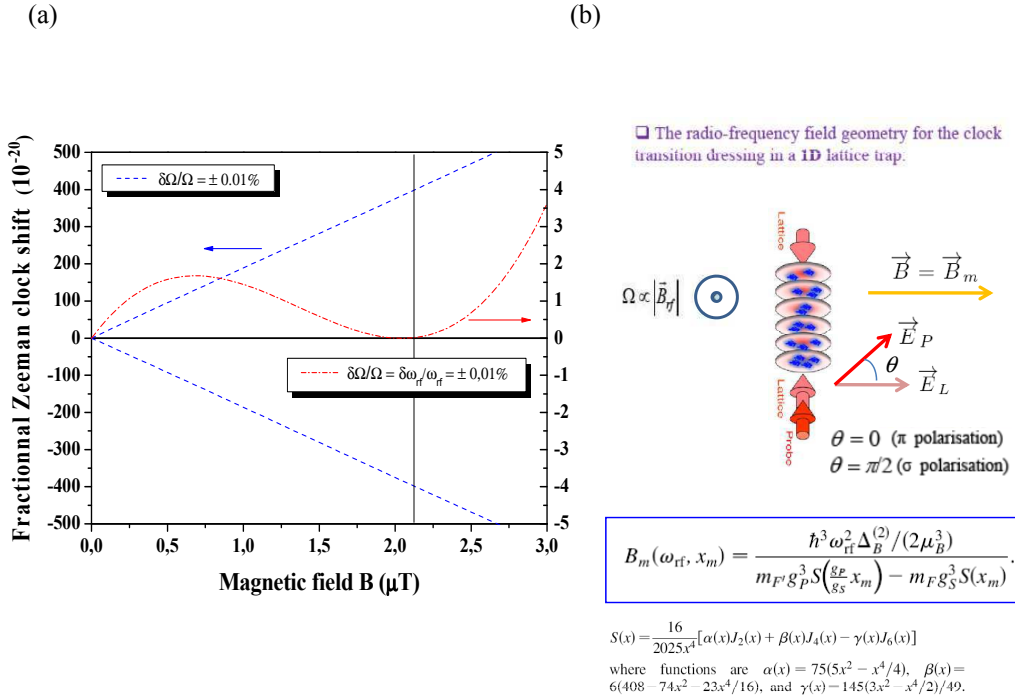


FIGURE 1.13 – (a) Déplacement Zeeman non-linéaire de la transition d'horloge sous l'effet de l'habillage radiofréquence. (b) Géométrie de l'habillage sur le piège dipolaire de confinement des atomes de ^{87}Sr .

^{87}Sr				
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{9}{2} \rightarrow -\frac{9}{2}$	$+\frac{9}{2} \rightarrow +\frac{9}{2}$	$-\frac{9}{2} \rightarrow -\frac{9}{2}$	$+\frac{9}{2} \rightarrow +\frac{9}{2}$
x_m	0.9639	3.111	5.444	7.777
B_m (μT)	2.1	5.1	9.0	20.0
^{171}Yb				
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$
x_m	0.9776	3.157	5.527	7.906
B_m (μT)	0.08	0.12	0.33	0.68
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$
x_m	1.826	4.107	5.543	6.954
B_m (μT)	0.11	0.59	0.88	0.82
^{199}Hg				
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$
x_m	0.9115	2.931	5.117	7.221
B_m (μT)	0.02	0.05	0.11	0.34
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$
x_m	1.674	3.599	4.566	6.388
B_m (μT)	0.04	0.19	0.17	0.16

TABLE 1.3 – Couples "magiques" (x_m, B_m) pour des polarisations laser π et σ^\pm du strontium ^{87}Sr , de l'ytterbium ^{171}Yb et du mercure ^{199}Hg pour une radiofréquence fixée à $\omega_{rf}/2\pi = 2$ kHz. Les rapports $x_m = \Omega_m/\omega_{rf}$ sont évalués à partir de l'incertitude expérimentale disponible des facteurs de Landé de chaque espèce atomique. Une incertitude relative inférieure à 10^{-19} nécessite 6 chiffres significatifs.

devant la radiofréquence, le facteur gyromagnétique d'un spin 1/2 subit une renormalisation décrite par une fonction de Bessel d'ordre zéro [22]. La figure Fig. 1.11(c) présente la renormalisation du facteur gyromagnétique pour un spin 1/2 lorsque le champ statique est négligeable devant la radiofréquence. La figure Fig. 1.11(d) montre l'influence de l'habillage radiofréquence sur la position des zéros du facteur gyromagnétique lorsque le champ statique n'est plus forcément petit devant la radiofréquence. On compare également ce résultat avec une solution analytique plus complexe qu'une simple fonction de Bessel d'ordre zéro [23]. Le calcul complet des états d'énergie d'un spin 1/2 dans un champ radiofréquence est présenté dans le paragraphe III de la référence **Phys. Rev. A 87, 023424 (2013)**. Cette méthode de calcul permet d'évaluer la modification du facteur de Landé en présence d'un champ radiofréquence quelle que soit la valeur du champ magnétique statique appliquée sur le système atomique ou moléculaire.

1.4.2 Le champ magnétique "magique" pour un spin nucléaire

A partir des résultats précédents, j'ai choisi la méthode de la fraction continue d'Autler-Townes pour évaluer avec précision l'influence d'un habillage radiofréquence sur l'état 3P_0 du ^{87}Sr . Dans la figure Fig. 1.12(a) est présenté l'éclatement Zeeman des sous niveaux

$m_F = \pm 9/2$ des états 1S_0 et 3P_0 du Strontium ^{87}Sr en fonction du champ magnétique statique B appliqué sur le nuage d'atomes froids. La renormalisation des états d'énergie en fonction de l'amplitude radiofréquence Ω est rapportée sur la figure Fig. 1.12(b). Enfin, la figure Fig. 1.12(c) représente l'effondrement très rapide des valeurs du champ magnétique pour lesquelles il existe une valeur "magique" B_m qui annule à la fois le déplacement Zeeman différentiel ΔE^d et la dérivée première $\partial E/\partial \omega_0$ de la transition d'horloge $^1S_0 \rightarrow ^3P_0$. Le principe d'un habillage "magique" sur le spin nucléaire de plusieurs espèces fermioniques ^{87}Sr , ^{199}Hg et ^{171}Yb permet de réaliser un déplacement Zeeman non-linéaire présenté sur la figure Fig. 1.13(a) qui élimine en même temps le déplacement Zeeman différentiel de la transition d'horloge et rend la résonance atomique insensible aux fluctuations d'intensité du champ statique au premier ordre.

On rapporte, dans le tableau Tab. 1.3, les valeurs d'amplitude du champ radiofréquence capables d'annuler le déplacement Zeeman différentiel et la sensibilité aux fluctuations du champ statique. Notons également que le déplacement par polarisabilité vectorielle pourrait être compensé avec l'habillage radiofréquence du spin nucléaire puisque le champ magnétique fictif associé est toujours dans le plan perpendiculaire au champ radiofréquence non résonnant comme le montre la figure Fig. 1.13(b). Tous les résultats importants sont regroupés et discutés dans l'article **Phys. Rev. Lett.** **109**, 223003 (2012) et peuvent être étendus à d'autres espèces atomiques fermioniques comme l'ytterbium ou le mercure. Cet exemple d'habillage électromagnétique permet de créer artificiellement des champs "magiques" magnétiques ou électriques qui peuvent modifier les potentiels de piégeage sans chauffer les atomes. A titre d'exemple, rappelons que l'habillage du facteur de Landé a été réalisé sur un condensat de Bose-Einstein de chrome ^{52}Cr ultra-froid sans le détruire [24]. Ces études étaient motivées, à l'époque de mon poste ATER dans l'équipe Nanochrome au LPL, par la tentative de réaliser une dégénérescence des états magnétiques de spin dans l'état fondamental 7S_3 afin d'observer des états collectifs d'un spineur, condensat constitué par un mélange à plusieurs composantes Zeeman. Pour finir, il est intéressant de remarquer qu'une première démonstration expérimentale d'un tel habillage radiofréquence destiné à réduire la sensibilité d'atomes froids de Rydberg aux fluctuations d'un champ électrique statique a été réalisée récemment avec des champs oscillants par une équipe canadienne à l'institut d'information quantique de l'université de Waterloo [25].

1.5 Remarques générales et perspectives

Ce chapitre a présenté les travaux réalisés sur la première étude poussée du couplage atomique d'un spin nucléaire avec les électrons de valence d'un alcalino-terreux ainsi que la caractérisation expérimentale du spectre Zeeman associé au ^{87}Sr . Le résultat est une activation de la transition atomique entre deux états de même moment angulaire $J = 0$. La faible contamination radiative de l'état 3P_0 conduit à une largeur théorique de la raie atomique de quelques mHz à une fréquence optique de 430 THz. Le facteur de qualité de cette résonance atomique, de plus de 10^{15} , et la faible sensibilité du spin nucléaire, 1000

fois moins sensible que le spin électronique aux fluctuations du champ magnétique, en font une résonance aux propriétés métrologiques remarquables pour une futur horloge optique de très haute exactitude. Ce travail a également permis de répondre à l'objectif d'établir une formule qui décrit avec précision la levée de dégénérescence des états magnétiques de la transition d'horloge en fonction de l'amplitude du champ magnétique appliqué sur les atomes piégés dans un réseau optique. Notons par comparaison avec une transition atomique hyperfine d'un alcalin que le terme Zeeman quadratique du ^{133}Cs est déjà 10^8 fois plus important que le terme quadratique du spin nucléaire du ^{87}Sr . Pour un déplacement quadratique de -23.3 MHz/T^2 et en appliquant un champ de l'ordre de $100 \mu\text{T}$ contrôlé à $1 \mu\text{T}$, on peut obtenir des raies séparées de 110 Hz avec une incertitude relative déjà meilleure que 10^{-18} sur l'effet du second ordre en champ magnétique [13]. Depuis ce travail, les résultats du modèle semi-empirique de Breit-Wills ont été appliqués à d'autres espèces atomiques possédant une configuration électronique similaire comme l'ytterbium [26] ou le mercure [27]. Bien que l'habillage d'un spin nucléaire par un champ oscillant et non résonant n'ajoute rien d'essentiel aux performances actuelles des étalons de fréquence optique, il peut ouvrir de nouvelles perspectives sur le contrôle fin des états atomiques par des champs de couplage extérieurs au réseau dipolaire de piégeage des atomes.

Depuis quelques temps, il faut souligner que la communauté de la physique atomique s'intéresse à la simulation du magnétisme orbital, qui se manifeste dans les gaz d'électrons bidimensionnels de la physique du solide, à l'aide d'atomes piégés dans des réseaux optiques à plusieurs longueurs d'ondes. Bien que les atomes soient électriquement neutres, il est désormais possible à l'aide de lasers de manipuler les états internes de l'atome et de créer artificiellement des potentiels de jauge semblables au potentiel vecteur de l'électromagnétisme [28]. L'existence d'une transition d'horloge très étroite dans les systèmes atomiques alcalino-terreux devient ici un élément central dans la réalisation d'un potentiel de jauge artificiel sans perturbation par émission spontanée [29]. La création et le contrôle expérimental d'un magnétisme artificiel ouvrirait la voie à l'observation de transitions de phases analogues à l'effet Hall quantique associé au spectre en énergie d'un électron de Hofstadter contraint de se déplacer dans un réseau carré à deux dimensions en présence d'un flux de champ magnétique intense [30, 31]. Par analogie, on pourrait imaginer de forcer les électrons de valence d'un atome à effectuer un trajectoire fermée dans un espace de Hilbert piloté par plusieurs champs électromagnétiques périodiques dans le temps capables de générer des phases géométriques reliées à l'existence d'un champ magnétique fictif qui ouvrirait peut-être un thème de recherche en spectroscopie laser sur le moyen d'activer de nouvelles transitions atomiques normalement interdites de manière purement artificielle

1.6 Articles associés

1.6.1 [Opt. Lett 32, 641 \(2007\)](#)

Compact, thermal-noise-limited optical cavity for diode laser stabilization at 1×10^{-15}

A. D. Ludlow, X. Huang,* M. Notcutt, T. Zanon-Willette, S. M. Foreman, M. M. Boyd, S. Blatt, and J. Ye

*JILA, National Institute of Standards and Technology, and University of Colorado Department of Physics,
University of Colorado, Boulder, Colorado 80309-0440, USA*

Received October 30, 2006; accepted November 25, 2006;
posted December 20, 2006 (Doc. ID 76598); published February 15, 2007

We demonstrate phase and frequency stabilization of a diode laser at the thermal noise limit of a passive optical cavity. The system is compact and exploits a cavity design that reduces vibration sensitivity. The subhertz laser is characterized by comparison with a second independent system with similar fractional frequency stability (1×10^{-15} at 1 s). The laser is further characterized by resolving a 2 Hz wide, ultranarrow optical clock transition in ultracold strontium. © 2007 Optical Society of America

OCIS codes: 140.2020, 030.1640, 300.6320.

Highly frequency-stabilized lasers are essential in high-resolution spectroscopy and quantum measurements,¹ optical atomic clocks,^{2–4} and quantum information science.⁵ To achieve superior stability with high bandwidth control, the laser output is traditionally servo locked to a highly isolated passive optical cavity by using the Pound–Drever–Hall (PDH) technique.⁶ Typical limits to the resulting laser stability include vibration-induced cavity length fluctuation, photon detection shot noise, and thermal-mechanical noise of the passive cavity components.^{7,8} By thoughtful system design, the relative impact of these noise contributions can be adjusted. Here we report a cavity-laser system that achieves high stability with an appropriate compromise between acceleration sensitivity and thermal noise. The compact, cavity-stabilized diode laser has a subhertz linewidth (at several seconds) and is thermal noise limited to a fractional (in)stability of $\sim 1 \times 10^{-15}$ at time scales of 0.5–300 s. As further evidence of the laser's optical stability, we use it to interrogate an ultranarrow optical atomic transition in neutral atomic strontium. We resolve an optical transition linewidth of ~ 2 Hz, the narrowest optical atomic resonance observed to date.

The laser source in this Letter is a diode laser (Hitachi HL6738MG, AR-coated⁹) in an external cavity of the Littman configuration operating at 698 nm [Fig. 1(a)]. The laser is first prestabilized to a simple optical cavity with finesse of $\sim 10,000$. The PDH stabilization is accomplished via feedback to the laser diode current and the laser cavity piezoelectric transducer (PZT). The servo bandwidth is 2–3 MHz. The prestabilized laser light is first-order diffracted by an acousto-optic modulator (AOM) and fiber coupled to a platform on which an ultrastable cavity resides. This platform is mounted on a commercially available passive vibration isolation unit (Minus K, resonant frequency of 0.5–1 Hz). Both the platform and the isolation unit are within a temperature-controlled enclosure lined with acoustic-damping foam. On the platform, the prestabilized laser light is phase modulated by an electro-optic modulator operating at

5 MHz. Approximately $10 \mu\text{W}$ of optical power is incident on the ultrastable cavity for PDH locking. Stabilization to this cavity is accomplished via feedback to the AOM and a PZT controlling the prestabilization cavity length. The servo bandwidth for this final locking stage is ~ 100 kHz. The useful output of the laser is delivered from a fiber port located near the ultrastable cavity on the same platform. The entire optical setup occupies less than 1 m^3 .

The ultrastable cavity has a finesse of 250,000 and is 7 cm long (cavity linewidth of ~ 7 kHz). Both the spacer and the optically bonded mirror substrates are made of ultralow expansion glass (ULE). To maintain small sensitivity of cavity length to acceleration, we implemented the following design features. First, because the acceleration sensitivity of fractional cavity length scales with the cavity length, we chose a somewhat short cavity spacer¹⁰ (7 cm). Second, the cavity is held at its midplane to achieve symmetric stretching and compressing of the two halves of the cavity during acceleration to suppress vibration sensitivity.^{10–12} The cavity is mounted vertically to exploit the intuitive symmetry in the vertical direction [see Fig. 1(b)]. This mounting is accomplished by a monolithically attached midplane ring resting on three Teflon rods. Third, the cavity is wider in the

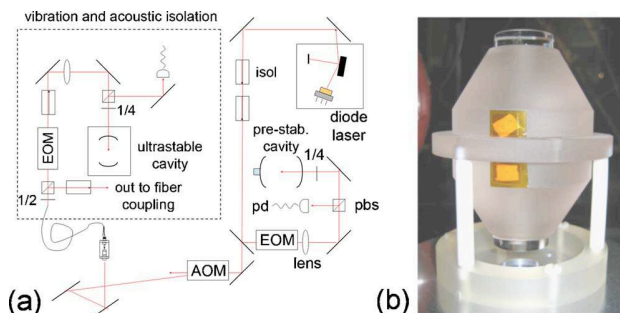


Fig. 1. (Color online) (a) Schematic of the laser and passive cavity optical setup. EOM, electro-optic modulator; AOM, acousto-optic modulator; $\frac{1}{4}$, quarter-wave plate; $\frac{1}{2}$, half-wave plate; isol, optical isolator; pbs, polarizing beam splitter; pd, photodetector. (b) High-finesse, ultrastable ULE optical cavity in its vertical mounting configuration.

middle and tapered at the ends, allowing more rigid construction without excess material. This cavity was designed in our laboratory and constructed in conjunction with a dozen other quantum metrology laboratories around the world. It is now commercially available, facilitating 1 Hz laser stabilization to any interested research lab.¹³ The cavity and supporting rods are held in vacuum (10^{-6} Torr) by an ion pump (2 l/s); the cavity spacer has symmetric evacuation holes perpendicular to the optical axis. The vacuum can is single point temperature controlled to ~ 305 K within $500 \mu\text{K}$ over a 24 h period. Since the ion pump is not temperature controlled, we installed a black-body radiation baffle between the vacuum can and the ion pump.

To evaluate the final laser stability, a second cavity-laser system was constructed with a separate diode laser and a separate ultrastable cavity mounted on an independent vibration isolation platform in an independent enclosure. Light was transferred from one system to the other via optical fiber (employing fiber-phase-noise cancellation¹⁴) and a heterodyne beat between the two stabilized lasers was detected (Fig. 2 inset). Linear drifts of ≤ 1 Hz/s of the heterodyne beat were removed by applying a feedforward linear correction to reduce the drift to less than 50 mHz/s. At 300 mHz resolution bandwidth (RBW), the laser linewidth is 400 mHz (full width at half maximum). As the RBW is reduced to 150 mHz, linewidths of 220 mHz can be observed, while some fraction of the carrier power is moved into low-frequency noise sidebands. The fractional linewidth is below 1×10^{-15} . The stability of one of the lasers as measured by the fractional Allan deviation is also shown in Fig. 2. This measurement was taken directly by counting the heterodyne beat under linear drift cancellation. The theoretical estimate of the thermal-noise-limited stability is indicated as a solid horizontal line in the figure. This modeled thermal noise limit has nearly negligible contribution from the ULE spacer itself, while the contribution from the ULE mirror substrates is approximately 1.5 times that from the dielectric high-reflective coating.⁷

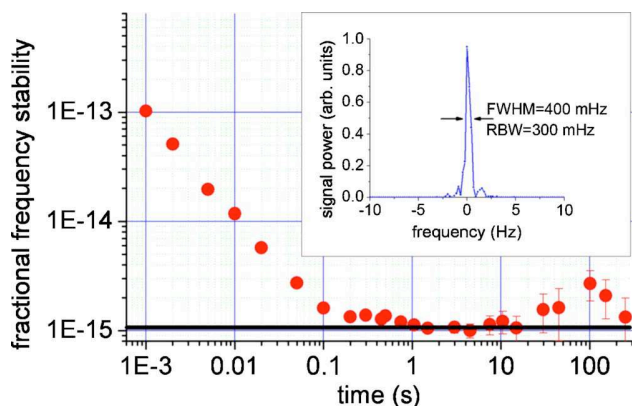


Fig. 2. (Color online) Fractional Allan deviation of the stabilized laser frequency. The solid curve near a fractional frequency stability of 1×10^{-15} denotes the thermal noise stability limit of the passive optical cavity. Inset, measurement of laser linewidth from the heterodyne beat.

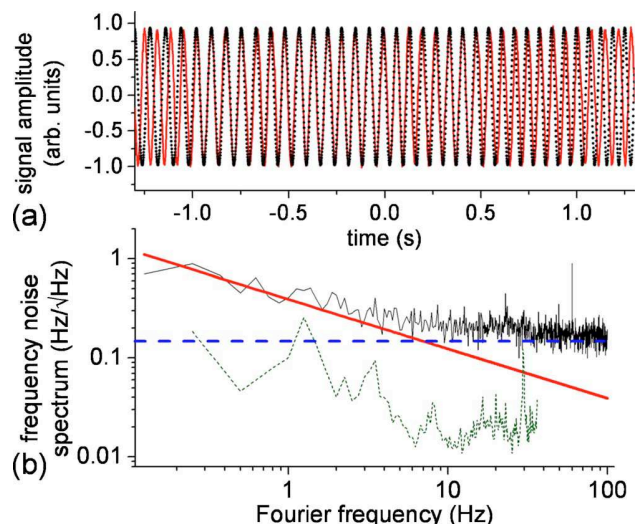


Fig. 3. (Color online) (a) Heterodyne beat of the two stabilized lasers, mixed down to 15 Hz. The dots indicate the measured data, and the solid curve is the chirped sine wave fit. The fit shows that the lasers maintain phase coherence within 1 rad for >2 s. (b) Frequency noise spectrum of the stabilized laser (solid data). The solid curve is the theoretical estimate of the thermal noise contribution, with its characteristic $1/\sqrt{f}$ dependence. The short-dashed data indicate contribution to laser frequency noise from the acceleration sensitivity of the optical cavity. The horizontal dashed line denotes the measurement noise floor and dominates laser frequency noise well above 10 Hz.

Except for a small noise bump at 100 s, the laser stability from 0.5 to 300 s coincides precisely with the modeled thermal noise limit.

Laser phase coherence was also observed via time-domain measurements. A 15 Hz heterodyne beat signal between the two lasers and its sine wave fit are shown in Fig. 3(a), with a linear chirp to account for the simple residual linear drift between the two lasers. The fit shows that the lasers remain phase coherent within 1 rad at the optical frequency of $\sim 4 \times 10^{14}$ Hz for a period >2 s.

The sensitivity of the cavity length to accelerations was measured by shaking the cavity and observing the additional frequency noise present on the laser tightly locked to the cavity resonance. This was also an optical heterodyne measurement, with the system that was not shaken serving as the reference oscillator. The vertical acceleration sensitivity was measured to be 30 kHz/m/s^2 . The horizontal acceleration sensitivity was 20 kHz/m/s^2 at 5 Hz; it dropped to 5 kHz/m/s^2 at 15 Hz because of mechanical isolation provided by the Teflon cavity mounting posts. The relatively short cavity used here constitutes a compromise between cavity acceleration sensitivity and the fractional thermal noise contributions (from the mirrors) to the cavity length stability. This compromise facilitates impressive diode laser stability at the 10^{-15} level with relatively straightforward vibration isolation. The difference in performance between this system and that of the highest recorded stability is consistent with the difference in cavity length that scales the fractional thermal noise.^{7,15}

To see this compromise more quantitatively, Fig. 3(b) shows the laser frequency noise spectrum. Below 5 Hz, the laser noise is dominated by thermal noise. Also shown is the laser noise contribution due to cavity acceleration—this is simply the measured acceleration noise spectrum on the vibration isolation platform scaled by the empirically determined acceleration sensitivity given above. The thermal noise contributes roughly a factor of 2 to 4 more than the acceleration noise. Consequently, the system could be further improved by using similar, but longer, mounted optical cavities together with fine tuning of the symmetrical rejection of acceleration sensitivity.¹⁰ In this case, the combined thermal and acceleration noise contributions can be kept small enough for laser fractional frequency stability at the low side of the 10^{-16} decade.

To further characterize the laser coherence properties, we used one of the stable 698 nm lasers to probe an ultranarrow, doubly forbidden optical clock transition (1S_0 – 3P_0 , natural linewidth ~ 1 mHz) in atomic strontium.¹⁶ We probed a collection of laser-cooled Sr atoms trapped in an optical lattice at a temperature of $2\ \mu\text{K}$. Atom interrogation was performed in the Lamb–Dicke regime, where both Doppler and recoil effects were eliminated. The recovered optical atomic transition is shown in Fig. 4. The linewidth of 2 Hz is the narrowest optical atomic transition observed to date (line quality factor $Q > 2 \times 10^{14}$). This linewidth corresponds closely to the Fourier limit given by the probe pulse duration (480 ms). Such a spectrum requires 20–30 s overall scanning time. The heterodyne beat between the two stabilized lasers integrated over 30 s reveals a single laser linewidth of ~ 2 Hz, suggesting that laser stability is the limiting factor in observing the narrow spectra. This atomic measurement provides a clean, independent confirmation of overall laser performance.

We have demonstrated a simple, compact, and ultrastable laser system useful for high precision metrology, quantum measurements, and quantum information applications, all of which require long atom-light coherence times. With the recent success of optical-lattice-based clocks in observing very high

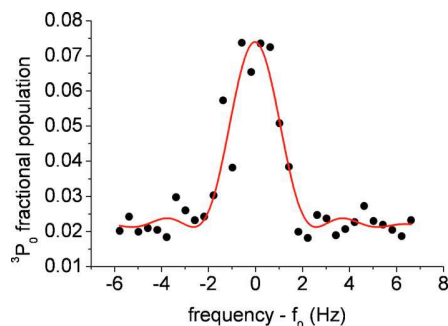


Fig. 4. (Color online) Narrow atomic resonance observed by probing ultracold strontium with the stabilized laser. The 2 Hz full width at half maximum is the narrowest optical atomic resonance observed to date. The transition frequency, f_0 , is $\sim 4.29 \times 10^{14}$ Hz.

line Q with large atom numbers,^{16,17} the fundamental quantum projection noise of such systems can allow for 1 s instabilities at 1×10^{-17} , achievable only if laser stability can further improve to permit observation of narrower atomic spectra. Consequently, future progress in this field requires pushing lasers to even higher stability. This requires improving the thermal noise limitation of passive optical cavities. This can be done in three ways^{7,8,12}: (1) lower temperatures, (2) longer cavities, and (3) substrate and dielectric coating materials with lower mechanical loss. While technical challenges exist for any of these, the approach demonstrated here is compatible with each of these three routes to improvement.

The authors thank J. Hall for his long-term leadership in laser stabilization. We also thank T. Zelevinsky of JILA and R. Lalezari of Advanced Thin Films. This work is supported by ONR, NIST, and NSF. A. D. Ludlow's e-mail address is ludlow@colorado.edu.

*Present address, State Key Laboratory of Magnetic Resonance and Atomic and Molecular Physics, Wuhan Institute of Physics and Mathematics, Chinese Academy of Sciences, Wuhan, 430071, China.

References

1. R. J. Rafac, B. C. Young, J. A. Beall, W. M. Itano, D. J. Wineland, and J. C. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2462 (2000).
2. A. D. Ludlow, M. M. Boyd, T. Zelevinsky, S. M. Foreman, S. Blatt, M. Notcutt, T. Ido, and J. Ye, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 033003 (2006).
3. H. Stoeck, F. Mensing, J. Helmcke, and U. Sterr, *Opt. Lett.* **31**, 736 (2006).
4. S. A. Webster, M. Oxborrow, and P. Gill, *Opt. Lett.* **29**, 1497 (2004).
5. F. Schmidt-Kaler, S. Gulde, M. Riebe, T. Deuschle, A. Kreuter, G. Lancaster, C. Becher, J. Eschner, H. Haffner, and R. Blatt, *J. Phys. B* **36**, 623 (2003).
6. R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward, *Appl. Phys. B* **31**, 97 (1983).
7. K. Numata, A. Kemery, and J. Camp, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 250602 (2004).
8. M. Notcutt, L.-S. Ma, A. D. Ludlow, S. M. Foreman, J. Ye, and J. L. Hall, *Phys. Rev. A* **73**, 031804R (2006).
9. Mention of commercial products is for information only; it does not imply NIST endorsement.
10. M. Notcutt, L.-S. Ma, J. Ye, and J. L. Hall, *Opt. Lett.* **30**, 1815 (2005).
11. L. Chen, J. L. Hall, J. Ye, T. Yang, E. Zang, and T. Li, *Phys. Rev. A* **74**, 053801 (2006).
12. T. Nazarova, F. Riehle, and U. Sterr, *Appl. Phys. B* **83**, 531 (2006).
13. R. Lalezari, Advanced Thin Films, Longmont, CO.
14. L.-S. Ma, P. Jungner, J. Ye, and J. L. Hall, *Opt. Lett.* **19**, 1777 (1994).
15. B. C. Young, F. C. Cruz, W. M. Itano, and J. C. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3799 (1999).
16. M. M. Boyd, T. Zelevinsky, A. D. Ludlow, S. M. Foreman, S. Blatt, T. Ido, and J. Ye, *Science* **314**, 1430 (2006).
17. Z. W. Barber, C. W. Hoyt, C. W. Oates, L. Hollberg, A. V. Taichenachev, and V. I. Yudin, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 083002 (2006).

1.6.2 [Phys. Rev. A 76, 022510 \(2007\)](#)

Nuclear spin effects in optical lattice clocks

Martin M. Boyd, Tanya Zelevinsky, Andrew D. Ludlow, Sebastian Blatt, Thomas Zanon-Willette,
Seth M. Foreman, and Jun Ye

*JILA, National Institute of Standards and Technology and University of Colorado,
Department of Physics, University of Colorado, Boulder, Colorado 80309-0440, USA*

(Received 6 April 2007; published 29 August 2007)

We present a detailed experimental and theoretical study of the effect of nuclear spin on the performance of optical lattice clocks. With a state-mixing theory including spin-orbit and hyperfine interactions, we describe the origin of the 1S_0 - 3P_0 clock transition and the differential g factor between the two clock states for alkaline-earth-metal(-like) atoms, using ^{87}Sr as an example. Clock frequency shifts due to magnetic and optical fields are discussed with an emphasis on those relating to nuclear structure. An experimental determination of the differential g factor in ^{87}Sr is performed and is in good agreement with theory. The magnitude of the tensor light shift on the clock states is also explored experimentally. State specific measurements with controlled nuclear spin polarization are discussed as a method to reduce the nuclear spin-related systematic effects to below 10^{-17} in lattice clocks.

DOI: [10.1103/PhysRevA.76.022510](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.76.022510)

PACS number(s): 32.10.Fn, 42.62.Eh, 32.60.+i, 42.62.Fi

Optical clocks [1] based on alkaline-earth-metal (atoms) confined in an optical lattice [2] are being intensively explored as a route to improve state of the art clock accuracy and precision. Pursuit of such clocks is motivated mainly by the benefits of Lamb-Dicke confinement which allows high spectral resolution [3,4] and high accuracy [5–8] with the suppression of motional effects, while the impact of the lattice potential can be eliminated using the Stark cancellation technique [9–12]. Lattice clocks have the potential to reach the impressive accuracy level of trapped ion systems, such as the Hg^+ optical clock [13], while having an improved stability due to the large number of atoms involved in the measurement. Most of the work performed thus far for lattice clocks has been focused on the nuclear-spin induced 1S_0 - 3P_0 transition in ^{87}Sr . Recent experimental results are promising for development of lattice clocks as high performance optical frequency standards. These include the confirmation that hyperpolarizability effects will not limit the clock accuracy at the 10^{-17} level [12], observation of transition resonances as narrow as 1.8 Hz [3], and the excellent agreement between high accuracy frequency measurements performed by three independent laboratories [5–8] with clock systematics associated with the lattice technique now controlled below 10^{-15} [6]. A main effort of the recent accuracy evaluations has been to minimize the effect that nuclear spin ($I=9/2$ for ^{87}Sr) has on the performance of the clock. Specifically, a linear Zeeman shift is present due to the same hyperfine interaction which provides the clock transition, and magnetic sublevel-dependent light shifts exist, which can complicate the Stark cancellation techniques. To reach accuracy levels below 10^{-17} , these effects need to be characterized and controlled.

The long coherence time of the clock states in alkaline-earth-metal(atoms) also makes the lattice clock an intriguing system for quantum information processing. The closed electronic shell should allow independent control of electronic and nuclear angular momenta, as well as protection of the nuclear spin from environmental perturbation, providing a robust system for coherent manipulation [14]. Recently, protocols have been presented for entangling nuclear spins in

these systems using cold collisions [15] and performing coherent nuclear spin operations while cooling the system via the electronic transition [16].

Precise characterization of the effects of electronic and nuclear angular-momentum-interactions and the resultant state mixing is essential to lattice clocks and potential quantum information experiments, and therefore is the central focus of this work. The organization of this paper is as follows. First, state mixing is discussed in terms of the origin of the clock transition as well as a basis for evaluating external field sensitivities on the clock transition. In the next two sections, nuclear-spin related shifts of the clock states due to both magnetic fields and the lattice trapping potential are discussed. The theoretical development is presented for a general alkaline-earth-metal-type structure, using ^{87}Sr only as an example (Fig. 1), so that the results can be applied to other species with similar level structure, such as Mg, Ca, Yb, Hg, Zn, Cd, Al^+ , and In^+ . Following the theoretical discussion is a detailed experimental investigation of these nuclear spin related effects in ^{87}Sr , and a comparison to the theory sections. Finally, the results are discussed in the context of the performance of optical lattice clocks, including a comparison with recent proposals to induce the clock transition using external fields in order to eliminate nuclear spin effects [17–22]. The Appendix contains additional details on the state mixing and magnetic sensitivity calculations.

I. STATE MIXING IN THE $ns\ np$ CONFIGURATION

To describe the two-electron system in intermediate coupling, we follow the method of Breit and Wills [23] and Lurio [24] and write the four real states of the $ns\ np$ configuration as expansions of pure spin-orbit (LS) coupling states,

$$|^3P_0\rangle = |^3P_0^0\rangle,$$

$$|^3P_1\rangle = \alpha|^3P_1^0\rangle + \beta|^1P_1^0\rangle,$$

$$|^3P_2\rangle = |^3P_2^0\rangle,$$

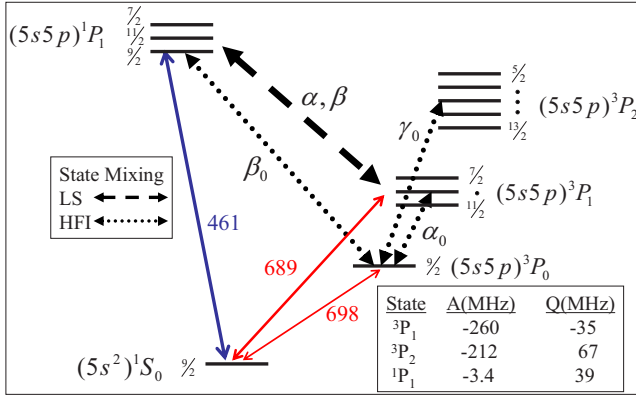


FIG. 1. (Color online) Simplified ^{87}Sr energy level diagram (not to scale). Relevant optical transitions discussed in the text are shown as solid arrows, with corresponding wavelengths given in nanometers. Hyperfine structure sublevels are labeled by total angular momentum F , and the magnetic dipole (A) and electric quadrupole (Q , equivalent to the hyperfine B coefficient) coupling constants are listed in the inset. State mixing of the 1P_1 and 3P_1 states due to the spin-orbit interaction is shown as a dashed arrow. Dotted arrows represent the hyperfine induced state mixing of the 3P_0 state with the other $F=9/2$ states in the $5s5p$ manifold.

$$|^1P_1\rangle = -\beta|^3P_1^0\rangle + \alpha|^1P_1^0\rangle. \quad (1)$$

Here the intermediate coupling coefficients α and β (0.9996 and -0.0286 , respectively, for Sr) represent the strength of the spin-orbit induced state mixing between singlet and triplet levels, and can be determined from experimentally measured lifetimes of 1P_1 and 3P_1 [see Eq. (A1) in the Appendix]. This mixing process results in a weakly allowed 1S_0 - 3P_1 transition (which would otherwise be spin forbidden), and has been used for a variety of experiments spanning different fields of atomic physics. In recent years, these intercombination transitions have provided a unique testing ground for studies of narrowline cooling in Sr [25–29] and Ca [30,31], as well as the previously unexplored regime of photoassociation using long-lived states [32–34]. These transitions have also received considerable attention as potential optical frequency standards [35–37], owing mainly to the high line quality factors and insensitivity to external fields. Fundamental symmetry measurements, relevant to searches of physics beyond the standard model, have also made use of this transition in Hg [38]. Furthermore, the lack of hyperfine structure in the bosonic isotopes ($I=0$) can simplify comparison between experiment and theory.

The hyperfine interaction (HFI) in fermionic isotopes provides an additional state mixing mechanism between states having the same total spin F , mixing the pure 3P_0 state with the 3P_1 , 3P_2 , and 1P_1 states,

$$|^3P_0\rangle = |^3P_0^0\rangle + \alpha_0|^3P_1\rangle + \beta_0|^1P_1\rangle + \gamma_0|^3P_2\rangle. \quad (2)$$

The HFI mixing coefficients α_0 , β_0 , and γ_0 (2×10^{-4} , -4×10^{-6} , and -1×10^{-6} , respectively, for ^{87}Sr) are defined in Eq. (A2) of the Appendix and can be related to the hyperfine splitting in the P states, the fine-structure splitting in the 3P states, and the coupling coefficients α and β [23,24]. The 3P_0

state can also be written as a combination of pure states using Eq. (1),

$$|^3P_0\rangle = |^3P_0^0\rangle + (\alpha_0\alpha - \beta_0\beta)|^3P_1^0\rangle + (\alpha_0\beta + \beta_0\alpha)|^1P_1^0\rangle + \gamma_0|^3P_2^0\rangle. \quad (3)$$

The HFI mixing enables a nonzero electric-dipole transition via the pure $^1P_1^0$ state, with a lifetime which can be calculated given the spin-orbit and HFI mixing coefficients, the 3P_1 lifetime, and the wavelengths (λ) of the 3P_0 and 3P_1 transitions from the ground state [39],

$$\tau^{^3P_0} = \left(\frac{\lambda^{^3P_0-^1S_0}}{\lambda^{^3P_1-^1S_0}} \right)^3 \frac{\beta^2}{(\alpha_0\beta + \beta_0\alpha)^2} \tau^{^3P_1}. \quad (4)$$

In the case of Sr, the result is a natural lifetime on the order of 100 seconds [9,40,41], compared to that of a bosonic isotope where the lifetime approaches 1000 years [41]. Although the 100 second coherence time of the excited state exceeds other practical limitations in current experiments, such as laser stability or lattice lifetime, coherence times approaching one second have been achieved [3]. The high spectral resolution has allowed a study of nuclear-spin related effects in the lattice clock system discussed below.

The level structure and state mixing discussed here are summarized in a simplified energy diagram, shown in Fig. 1, which gives the relevant atomic structure and optical transitions for the $5s5p$ configuration in ^{87}Sr .

II. THE EFFECT OF EXTERNAL MAGNETIC FIELDS

With the obvious advantages in spectroscopic precision of the 1S_0 - 3P_0 transition in an optical lattice, the sensitivity of the clock transition to external field shifts is a central issue in developing the lattice clock as an atomic frequency standard. To evaluate the magnetic sensitivity of the clock states, we follow the treatment of Ref. [24] for the intermediate coupling regime described by Eqs. (1)–(3) in the presence of a weak magnetic field. A more general treatment for the case of intermediate fields is provided in the Appendix. The Hamiltonian for the Zeeman interaction in the presence of a weak magnetic field B along the z axis is given as

$$H_Z = (g_s S_z + g_l L_z - g_I I_z) \mu_0 B. \quad (5)$$

Here $g_s \approx 2$ and $g_l = 1$ are the spin and orbital angular momentum g factors, and S_z , L_z , and I_z are the z components of the electron spin, orbital, and nuclear spin angular momentum, respectively. The nuclear g factor, g_I , is given by $g_I = \frac{\mu_I(1-\sigma_d)}{\mu_0 I}$, where μ_I is the nuclear magnetic moment, σ_d is the diamagnetic correction, and $\mu_0 = \frac{\mu_B}{h}$. Here, μ_B is the Bohr magneton, and h is Planck's constant. For ^{87}Sr , the nuclear magnetic moment and diamagnetic correction are $\mu_I = -1.0924(7)\mu_N$ [42] and $\sigma_d = 0.00345$ [43], respectively, where μ_N is the nuclear magneton. In the absence of state mixing, the 3P_0 g factor would be identical to the 1S_0 g factor (assuming the diamagnetic effect differs by a negligible amount for different electronic states), both equal to g_l . However since the HFI modifies the 3P_0 wave function, a differ-

ential g factor, δg , exists between the two states. This can be interpreted as a paramagnetic shift arising due to the distortion of the electronic orbitals in the triplet state, and hence the magnetic moment [44]. δg is given by

$$\begin{aligned}\delta g &= -\frac{\langle {}^3P_0 | H_Z | {}^3P_0 \rangle - \langle {}^3P_0^0 | H_Z | {}^3P_0^0 \rangle}{m_F \mu_0 B} \\ &= -2(\alpha_0 \alpha - \beta_0 \beta) \frac{\langle {}^3P_0^0, m_F | H_Z | {}^3P_1^0, F=I, m_F \rangle}{m_F \mu_0 B} \\ &\quad + \mathcal{O}(\alpha_0^2, \beta_0^2, \gamma_0^2, \dots).\end{aligned}\quad (6)$$

Using the matrix element given in the Appendix for ^{87}Sr ($I=9/2$), we find $\langle {}^3P_0^0, m_F | H_Z | {}^3P_1^0, F=9/2, m_F \rangle = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{2}{33}} m_F \mu_0 B$, corresponding to a modification of the 3P_0 g factor by $\sim 60\%$. Note that the sign in Eq. (6) differs from that reported in [44,39] due to our choice of sign for the nuclear term in the Zeeman Hamiltonian (opposite of that found in Ref. [24]). The resulting linear Zeeman shift $\Delta_B^{(1)} = -\delta g m_F \mu_0 B$ of the 1S_0 - 3P_0 transition is on the order of $\sim 110 \times m_F$ Hz/G (1 G = 10^{-4} Tesla). This is an important effect for the development of lattice clocks, as stray magnetic fields can broaden the clock transition (deteriorate the stability) if multiple sublevels are used. Furthermore, imbalanced population among the sublevels or mixed probe polarizations can cause frequency errors due to line shape asymmetries or shifts. It has been demonstrated that if a narrow resonance is achieved (10 Hz in the case of Ref. [6]), these systematics can be controlled at 5×10^{-16} for stray fields of less than 5 mG. To reduce this effect, one could employ narrower resonances or magnetic shielding.

An alternative measurement scheme is to measure the average transition frequency between m_F and $-m_F$ states to cancel the frequency shifts. This requires application of a bias field to resolve the sublevels, and therefore the second order Zeeman shift $\Delta_B^{(2)}$ must be considered. The two clock states are both $J=0$ so the shift $\Delta_B^{(2)}$ arises from levels separated in energy by the fine-structure splitting, as opposed to the more traditional case of alkali-metal (-like) atoms where the second order shift arises from nearby hyperfine levels. The shift of the clock transition is dominated by the interaction of the 3P_0 and 3P_1 states since the ground state is separated from all other energy levels by optical frequencies. Therefore, the total Zeeman shift of the clock transition Δ_B is given by

$$\Delta_B = \Delta_B^{(1)} + \Delta_B^{(2)} = \Delta_B^{(1)} - \sum_{F'} \frac{|\langle {}^3P_0, F, m_F | H_Z | {}^3P_1, F', m_F \rangle|^2}{\nu^3_{P_1, F'} - \nu^3_{P_0}}. \quad (7)$$

Here $\nu^3_{P_0}$ ($\nu^3_{P_1, F'}$) represents the energy of 3P_0 (${}^3P_1, F'$) state in frequency. The frequency difference in the denominator is mainly due to the fine-structure splitting and is nearly independent of F' , and can therefore be pulled out of the summation. In terms of the pure states, and ignoring terms of order α_0 , β_0 , β^2 , and smaller, we have

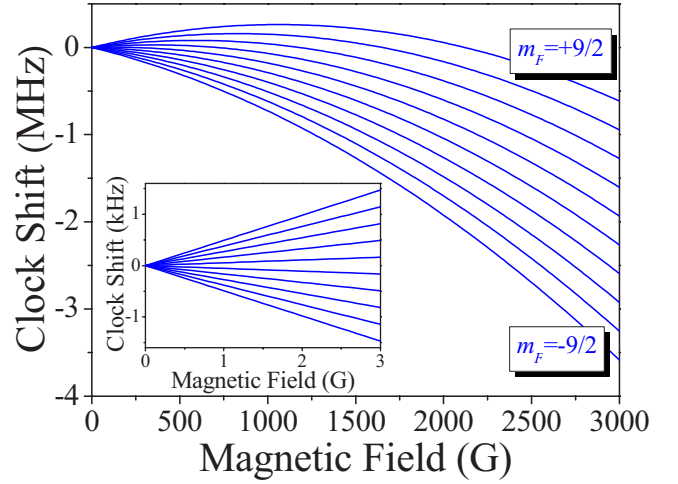


FIG. 2. (Color online) A Breit-Rabi diagram for the 1S_0 - 3P_0 clock transition using Eq. (A8) with $\delta g \mu_0 = -109$ Hz/G. Inset shows the linear nature of the clock shifts at the fields relevant for the measurement described in the text.

$$\begin{aligned}\Delta_B^{(2)} &\simeq -\alpha^2 \frac{\sum_{F'} |\langle {}^3P_0^0, F, m_F | H_Z | {}^3P_1^0, F', m_F \rangle|^2}{\nu^3_{P_1} - \nu^3_{P_0}} \\ &= -\frac{2\alpha^2 (g_l - g_s)^2 \mu_0^2}{3(\nu^3_{P_1} - \nu^3_{P_0})} B^2,\end{aligned}\quad (8)$$

where we have used the matrix elements given in the Appendix for the case $F=9/2$. From Eq. (8) the second order Zeeman shift (given in Hz for a magnetic field given in Gauss) for ^{87}Sr is $\Delta_B^{(2)} = -0.233 B^2$. This is consistent with the results obtained in Refs. [20,45] for the bosonic isotope. Inclusion of the hyperfine splitting into the frequency difference in the denominator of Eq. (7) yields an additional term in the second order shift proportional to m_F^2 which is more than 10^{-6} times smaller than the main effect, and therefore negligible. Notably, the fractional frequency shift due to the second order Zeeman effect of $5 \times 10^{-16} \text{ G}^{-2}$ is nearly 10^8 times smaller than that of the Cs [46,47] clock transition, and more than an order of magnitude smaller than that present in Hg^+ [13], Sr^+ [48,49], and Yb^+ [50,51] ion optical clocks.

A Breit-Rabi-like diagram is shown in Fig. 2, giving the shift of the 1S_0 - 3P_0 transition frequency for different m_F sublevels (assuming $\Delta m=0$ for π transitions), as a function of magnetic field. The calculation is performed using an analytical Breit-Rabi formula [Eq. (A8)] provided in the Appendix. The result is indistinguishable from the perturbative derivation in this section, even for fields as large as 10^4 G.

III. THE EFFECT OF THE OPTICAL LATTICE POTENTIAL

In this section we consider the effect of the confining potential on the energy shifts of the nuclear sublevels. In the presence of a lattice potential of depth U_T , formed by a laser linearly polarized along the axis of quantization defined by

an external magnetic field B , the level shift of a clock state ($h\Delta_{g/e}$) from its bare energy is given by

$$\begin{aligned}\Delta_e = & -m_F(g_I + \delta g)\mu_0 B - \kappa_e^S \frac{U_T}{E_R} - \kappa_e^V \xi m_F \frac{U_T}{E_R} \\ & - \kappa_e^T [3m_F^2 - F(F+1)] \frac{U_T}{E_R}, \\ \Delta_g = & -m_F g_I \mu_0 B - \kappa_g^S \frac{U_T}{E_R} - \kappa_g^V \xi m_F \frac{U_T}{E_R} \\ & - \kappa_g^T [3m_F^2 - F(F+1)] \frac{U_T}{E_R}.\end{aligned}\quad (9)$$

Here, κ^S , κ^V , and κ^T are shift coefficients proportional to the scalar, vector (or axial), and tensor polarizabilities, and subscripts e and g refer to the excited (3P_0) and ground (1S_0) states, respectively. E_R is the energy of a lattice photon recoil and U_T/E_R characterizes the lattice intensity. The vector ($\propto m_F$) and tensor ($\propto m_F^2$) light shift terms arise solely from the nuclear structure and depend on the orientation of the light polarization and the bias magnetic field. The tensor shift coefficient includes a geometric scaling factor which varies with the relative angle ϕ of the laser polarization axis and the axis of quantization, as $3 \cos^2 \phi - 1$. The vector shift, which can be described as a pseudomagnetic field along the propagation axis of the trapping laser, depends on the trapping geometry in two ways. First, the size of the effect is scaled by the degree of elliptical polarization ξ , where $\xi=0$ ($\xi=\pm 1$) represents perfect linear (circular) polarization. Second, for the situation described here, the effect of the vector light shift is expected to be orders of magnitude smaller than the Zeeman effect, justifying the use of the bias magnetic field direction as the quantization axis for all of the m_F terms in Eq. (9). Hence the shift coefficient depends on the relative angle between the pseudomagnetic and the bias magnetic fields, vanishing in the case of orthogonal orientation [52]. A more general description of the tensor and vector effects in alkaline-earth-metal systems for the case of arbitrary elliptical polarization can be found in Ref. [10]. Calculations of the scalar, vector, and tensor shift coefficients have been performed elsewhere for Sr, Yb, and Hg [9–11, 52] and will not be discussed here. Hyperpolarizability effects ($\propto U_T^2$) [9–12] are ignored in Eq. (9) as they are negligible in ^{87}Sr at the level of 10^{-17} for the range of lattice intensities used in current experiments [12]. The second order Zeeman term has been omitted as the effect is also at the 10^{-17} level for fields used in this work.

Using Eq. (9) we can write the frequency of a π transition ($\Delta m_F=0$) from a ground state m_F as

$$\begin{aligned}\nu_{\pi_{m_F}} = & \nu_c - [\Delta\kappa^S - \Delta\kappa^T F(F+1)] \frac{U_T}{E_R} \\ & - (\Delta\kappa^V m_F \xi + \Delta\kappa^T 3m_F^2) \frac{U_T}{E_R} - \delta g m_F \mu_0 B,\end{aligned}\quad (10)$$

where the shift coefficients due to the differential polarizabilities are represented as $\Delta\kappa$, and ν_c is the bare clock fre-

quency. The basic principle of the lattice clock technique is to tune the lattice wavelength (and hence the polarizabilities) such that the intensity-dependent frequency shift terms are reduced to zero. Due to the m_F dependence of the third term of Eq. (10), the Stark shifts cannot be completely compensated for all of the sublevels simultaneously. Or equivalently, the magic wavelength will be different depending on the sublevel used. The significance of this effect depends on the magnitude of the tensor and vector terms. Fortunately, in the case of the 1S_0 - 3P_0 transition the clock states are electronically scalar, and hence these effects are expected to be quite small. While theoretical estimates for the polarizabilities have been made, experimental measurements are so far unavailable for the vector and tensor terms. The frequencies of σ^\pm ($\Delta m_F = \pm 1$) transitions from a ground m_F state are similar to the π transitions, given by

$$\begin{aligned}\nu_{\sigma_{m_F}^\pm} = & \nu_c - [\Delta\kappa^S - \Delta\kappa^T F(F+1)] \frac{U_T}{E_R} - \{\kappa_e^V(m_F \pm 1) \\ & - \kappa_g^V m_F\} \xi \frac{U_T}{E_R} - [\kappa_e^T 3(m_F \pm 1)^2 - \kappa_g^T 3m_F^2] \frac{U_T}{E_R} \\ & - [\pm g_I + \delta g(m_F \pm 1)] \mu_0 B.\end{aligned}\quad (11)$$

IV. EXPERIMENTAL DETERMINATION OF FIELD SENSITIVITIES

To explore the magnitude of the various m_F -dependent shifts in Eq. (10), a differential measurement scheme has been used to eliminate the large shifts common to all levels. Using resolved sublevels one can extract m_F sensitivities by measuring the splitting of neighboring states. This is the approach taken here. A diagram of our spectroscopic setup is shown in Fig. 3(a). ^{87}Sr atoms are captured from a thermal beam into a magneto-optical trap (MOT), based on the 1S_0 - 1P_1 cycling transition. The atoms are then transferred to a second stage MOT for narrow line cooling using a dual frequency technique [26]. Full details of the cooling and trapping system used in this work are discussed elsewhere [5, 28]. During the cooling process, a vertical one-dimensional lattice is overlapped with the atom cloud. We typically load $\sim 10^4$ atoms into the lattice at a temperature of $\sim 1.5 \mu\text{K}$. The lattice is operated at the Stark cancellation wavelength [6, 12] of 813.4280(5) nm with a trap depth of $U_0 = 35E_R$. A Helmholtz coil pair provides a field along the lattice polarization axis for resolved sublevel spectroscopy. Two other coil pairs are used along the other axes to zero the orthogonal fields. The spectroscopy sequence for the 1S_0 - 3P_0 clock transition begins with an 80 ms Rabi pulse from a highly stabilized diode laser [53] that is copropagated with the lattice laser. The polarization of the probe laser is linear at an angle θ relative to that of the lattice. A shelved detection scheme is used, where the ground state population is measured using the 1S_0 - 1P_1 transition. The 3P_0 population is then measured by pumping the atoms through intermediate states using 3P_0 - 3S_1 , 3P_2 - 3S_1 , and the natural decay of 3P_1 , before applying a second 1S_0 - 1P_1 pulse. The 461 nm pulse is destructive, so for each frequency step of the probe laser the

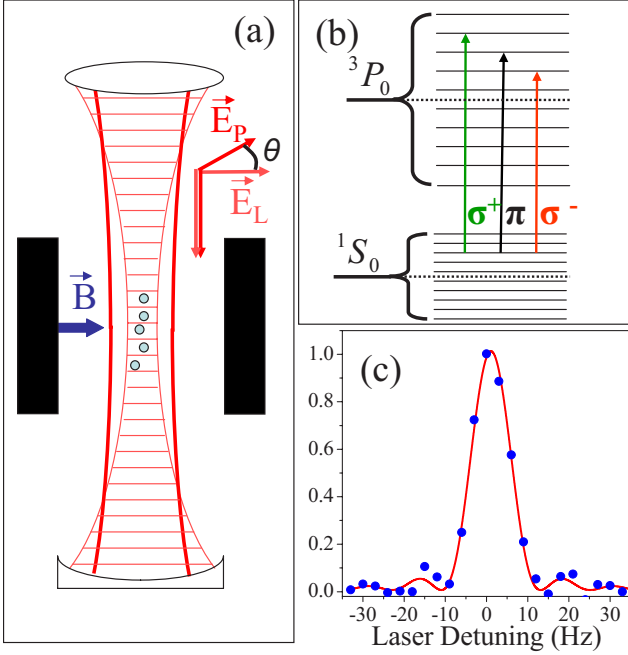


FIG. 3. (Color online) (a) Schematic of the experimental apparatus used here. Atoms are confined in a nearly vertical optical lattice formed by a retroreflected 813 nm laser. A 698 nm probe laser is coaligned with the lattice. The probe polarization E_P can be varied by an angle θ relative to that of the linear lattice polarization E_L . A pair of Helmholtz coils (blue) is used to apply a magnetic field along the lattice polarization axis. (b) Nuclear structure of the 1S_0 and 3P_0 clock states. The large nuclear spin ($I=9/2$) results in 28 total transitions, and the labels π , σ^+ , and σ^- represent transitions where m_F changes by 0, +1, and -1, respectively. (c) Observation of the clock transition without a bias magnetic field. The 3P_0 population (in arbitrary units) is plotted (blue dots) versus the probe laser frequency for $\theta=0$, and a fit to a sinc-squared lineshape yields a Fourier-limited linewidth of 10.7(3) Hz. Linewidths of 5 Hz have been observed under similar conditions and when the probe time is extended beyond 200 ms.

~800 ms loading and cooling cycle is repeated.

When π polarization is used for spectroscopy ($\theta=0$), the large nuclear spin provides ten possible transitions, as shown schematically in Fig. 3(b). Figure 3(c) shows a spectroscopic measurement of these states in the absence of a bias magnetic field. The suppression of motional effects provided by the lattice confinement allows observation of extremely narrow lines [3,4,19], in this case having Fourier-limited full width at half maximum (FWHM) of ~10 Hz (quality factor of 4×10^{13}). In our current apparatus the linewidth limitation is 5 Hz with degenerate sublevels and 1.8 Hz when the degeneracy is removed [3]. The high spectral resolution allows for the study of nuclear spin effects at small bias fields, as the ten sublevels can easily be resolved with a few hundred mG. An example of this is shown in Fig. 4, where the ten transitions are observed in the presence of a 0.58 G bias field. This is important for achieving a high accuracy measurement of δg as the contribution from magnetic-field-induced state mixing is negligible. To extract the desired shift coefficients we note that for the π transitions we have a frequency gap between neighboring lines of

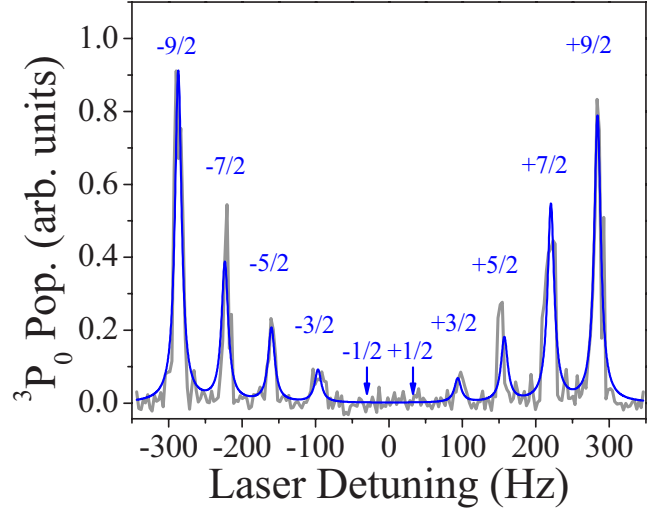


FIG. 4. (Color online) Observation of the 1S_0 - 3P_0 π transitions ($\theta=0$) in the presence of a 0.58 G magnetic field. Data is shown in gray and a fit to the eight observable line shapes is shown as a blue curve. The peaks are labeled by the ground state m_F sublevel of the transition. The relative transition amplitudes for the different sublevels are strongly influenced by the Clebsch-Gordan coefficients. Here, transition linewidths of 10 Hz are used. Spectra as narrow as 1.8 Hz have been achieved under similar conditions if the probe time is extended to 500 ms.

$$\begin{aligned} f_{\pi, m_F} &= \nu_{\pi, m_F} - \nu_{\pi, m_F-1} \\ &= -\delta g \mu_0 B - \Delta \kappa^V \xi \frac{U_T}{E_R} - \Delta \kappa^T 3(2m_F - 1) \frac{U_T}{E_R}. \end{aligned} \quad (12)$$

From Eq. (12), we see that by measuring the differences in frequency of two spectroscopic features, the three terms of interest (δg , $\Delta \kappa^V$, and $\Delta \kappa^T$) can be determined independently. The differential g factor can be determined by varying the magnetic field. The contribution of the last two terms can be extracted by varying the intensity of the standing wave trap, and can be independently determined since only the tensor shift depends on m_F .

While the π transitions allow a simple determination of δg , the measurement requires a careful calibration of the magnetic field and a precise control of the probe laser frequency over the ~500 seconds required to produce a scan such as in Fig. 4. Any linear laser drift will appear in the form of a smaller or larger δg , depending on the laser scan direction. Furthermore, the measurement cannot be used to determine the sign of δg as an opposite sign would yield an identical spectral pattern. In an alternative measurement scheme, we instead polarize the probe laser perpendicular to the lattice polarization ($\theta=\pi/2$) to excite both σ^+ and σ^- transitions. In this configuration, 18 spectral features are observed and easily identified (Fig. 5). Ignoring small shifts due to the lattice potential, δg is given by extracting the frequency splitting between adjacent transitions of a given polarization (all σ^+ or all σ^- transitions) as $f_{\sigma^\pm, m_F} = \nu_{\sigma^\pm, m_F} - \nu_{\sigma^\pm, m_F-1} = -\delta g \mu_0 B$. If we also measure the frequency differ-

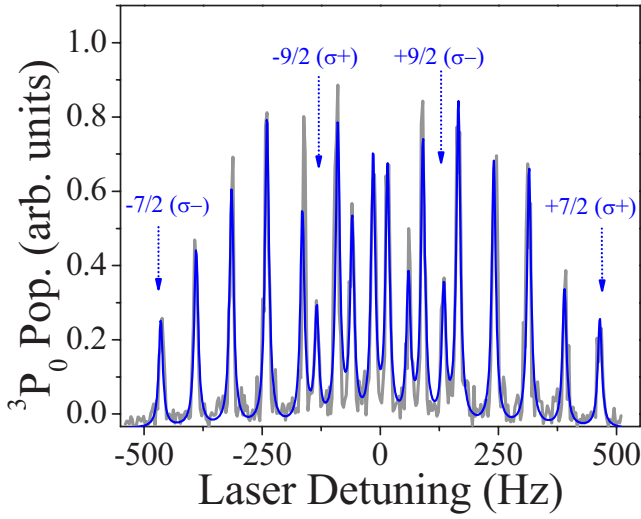


FIG. 5. (Color online) Observation of the 18 σ transitions when the probe laser polarization is orthogonal to that of the lattice ($\theta = \pi/2$). Here, a field of 0.69 G is used. The spectroscopic data is shown in gray and a fit to the data is shown as a blue curve. Peak labels give the ground state sublevel of the transition, as well as the excitation polarization.

ence between σ^+ and σ^- transitions from the same sublevel, $f_{d,m_F} = \nu_{\sigma^+} - \nu_{\sigma^-} = -2(g_I + \delta g)\mu_0 B$, we find that the differential g factor can be determined from the ratio of these frequencies as

$$\delta g = \frac{g_I}{\frac{f_{d,m_F}}{2f_{\sigma^\pm, m_F}} - 1}. \quad (13)$$

In this case, prior knowledge of the magnetic field is not required for the evaluation, nor is a series of measurement at different fields, as δg is instead directly determined from the line splitting and the known 1S_0 g factor, g_I . The field calibration and the δg measurement are in fact done simultaneously, making the method immune to some systematics which could mimic a false field, such as linear laser drift during a spectroscopic scan or slow magnetic field variations. Using the σ transitions also eliminates the sign ambiguity which persists when using the π transitions for measuring δg . While we cannot extract the absolute sign, the recovered spectrum is sensitive to the relative sign between g_I and δg . This is shown explicitly in Fig. 6 where the positions of the transitions have been calculated in the presence of a ~ 1 G magnetic field. Figure 6(a) shows the spectrum when the signs of g_I and δg are the same while in Fig. 6(b) the signs are opposite. The two plots show a qualitative difference between the two possible cases. Comparing Fig. 5 and Fig. 6 it is obvious that the hyperfine interaction *increases* the magnitude of the 3P_0 g factor (δg has the same sign as g_I). We state this point explicitly because of recent inconsistencies in theoretical estimates of the relative sign of δg and g_I in the ^{87}Sr literature [7,8].

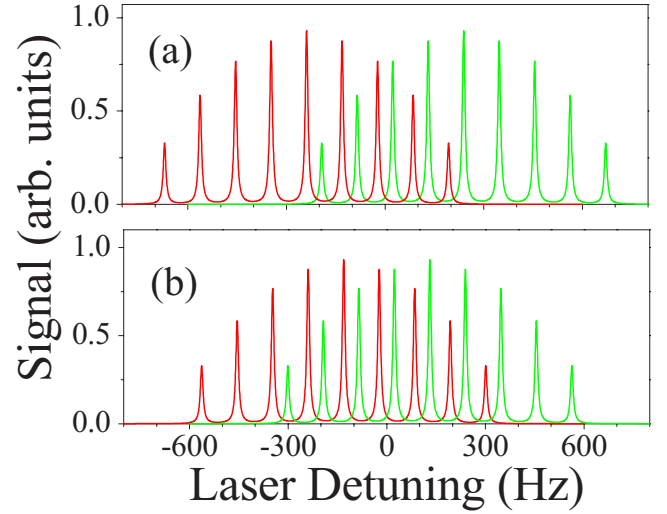


FIG. 6. (Color online) Calculation of the 18 σ transition frequencies in the presence of a 1 G bias field, including the influence of Clebsch-Gordan coefficients. The green (red) curves show the σ^+ (σ^-) transitions. (a) Spectral pattern for $g_I\mu_0 = -185$ Hz/G and $\delta g\mu_0 = -109$ Hz/G. (b) Same pattern as in (a) but with $\delta g\mu_0 = +109$ Hz/G. The qualitative difference in the relative positions of the transitions allows determination of the sign of δg compared to that of g_I .

To extract the magnitude of δg , data such as in Fig. 5 are fit with eighteen Lorentzian lines, and the relevant splitting frequencies f_{d,m_F} and f_{σ^\pm} are extracted. Due to the large number of spectral features, each experimental spectrum yields 16 measurements of δg . A total of 31 full spectra was taken, resulting in an average value of $\delta g\mu_0 = -108.4(4)$ Hz/G where the uncertainty is the standard deviation of the measured value. To check for sources of systematic error, the magnetic field was varied to confirm the field independence of the measurement. We also varied the clock laser intensity by an order of magnitude to check for Stark and line pulling effects. It is also necessary to consider potential measurement errors due to the optical lattice since in general the splitting frequencies f_{d,m_F} and f_{σ^\pm} will depend on the vector and tensor light shifts. For fixed fields, the vector shift is indistinguishable from the linear Zeeman shift [see Eqs. (10)–(12)] and can lead to errors in calibrating the field for a δg measurement. In this work, a high quality linear polarizer (10^{-4}) is used which would in principle eliminate the vector shift. The nearly orthogonal orientation should further reduce the shift. However, any birefringence of the vacuum windows or misalignment between the lattice polarization axis and the magnetic field axis can lead to a nonzero value of the vector shift. To measure this effect in our system, we varied the trapping depth over a range of $\sim (0.6-1.7)U_0$ and extrapolated δg to zero intensity, as shown in Fig. 7. Note that this measurement also checks for possible errors due to scalar and tensor polarizabilities as their effects also scale linearly with the trap intensity. We found that the δg measurement was affected by the lattice potential by less than 0.1%, well below the uncertainty quoted above.

Unlike the vector shift, the tensor contribution to the sublevel splitting is distinguishable from the magnetic contribu-

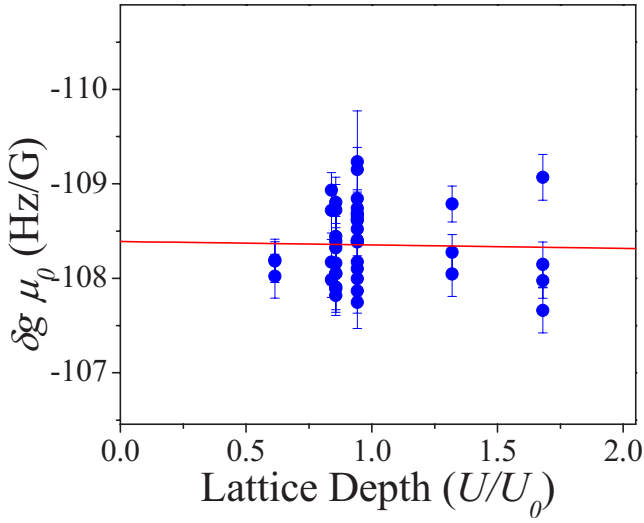


FIG. 7. (Color online) Summary of δg measurements for different lattice intensities. Each data point (and uncertainty) represents the δg value extracted from a full σ^\pm spectrum such as in Fig. 5. Linear extrapolation (red line) to zero lattice intensity yields a value $-108.4(1)$ Hz/G.

tion even for fixed fields. Adjacent σ transitions can be used to measure $\Delta\kappa^T$ and κ_e^T due to the m_F^2 dependence of the tensor shift. An appropriate choice of transition comparisons results in a measurement of the tensor shift without any contributions from magnetic or vector terms. To enhance the sensitivity of our measurement we focus mainly on the transitions originating from states with large m_F ; for example, we find that

$$\Delta\kappa^T = -\frac{f_{\sigma^+, m_F=7/2} - f_{\sigma^+, m_F=-7/2}}{42 \frac{U_T}{E_R}},$$

$$\kappa_e^T = -\frac{f_{d, m_F=7/2} - f_{d, m_F=-7/2}}{84 \frac{U_T}{E_R}}, \quad (14)$$

while similar combinations can be used to isolate the differential tensor shift from the σ^- data as well as the tensor shift coefficient of the 1S_0 state. From the σ splitting data we find $\Delta\kappa^T = 0.03(8)$ Hz/ U_0 and $|\kappa_e^T| = 0.02(4)$ Hz/ U_0 . The data for these measurements is shown in Fig. 8. Similarly, we extracted the tensor shift coefficient from π spectra, exploiting the m_F -dependent term in Eq. (12), yielding $\Delta\kappa^T = 0.02(7)$ Hz/ U_0 . The measurements here are consistent with zero and were not found to depend on the trapping depth used for a range of 0.85 – 1.7 U_0 , and hence are interpreted as conservative upper limits to the shift coefficients. The error bars represent the standard deviation of many measurements, with the scatter in the data due mainly to laser frequency noise and slight under sampling of the peaks. It is worth noting that the tensor shift of the clock transition is expected to be dominated by the 3P_0 shift, and therefore, the limit on κ_e^T can be used as an additional estimate for the upper limit

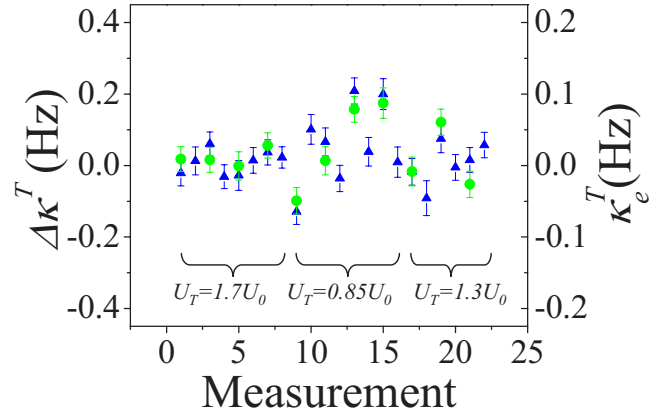


FIG. 8. (Color online) Measurement of the tensor shift coefficients $\Delta\kappa^T$ (blue triangles), and κ_e^T (green circles), using σ spectra and Eq. (14). The measured coefficients show no statistically significant trap depth dependence while varying the depth from 0.85 – 1.7 U_0 .

on $\Delta\kappa^T$. Improvements on these limits can be made by going to larger trap intensities to enhance sensitivity, as well as by directly stabilizing the clock laser to components of interest for improved averaging. Based on our polarizability calculations, which include the effect of both the nuclear-spin induced state mixing in the clock states and the hyperfine energy splitting in the intermediate states, we estimate that the tensor shift coefficients are more than two orders of magnitude smaller than the experimental upper limits reported here.

Table I summarizes the measured sensitivities to magnetic fields and the lattice potential. The Stark shift coefficients for linear polarization at $813.4280(5)$ nm are given in units of Hz/(U_T/E_R). For completeness, a recent measurement of the second order Zeeman shift using ^{88}Sr has been included [45], as well as the measured shift coefficient $\Delta\gamma$ for the hyperpolarizability [12] and the upper limit for the overall linear lattice shift coefficient κ from our recent clock measurement [6]. While we were able to confirm that the vector shift effect is small and consistent with zero in our system, we do not report a limit for the vector shift coefficient $\Delta\kappa^V$ as our system was designed with the lattice polarization and orienta-

TABLE I. Measured field sensitivities for ^{87}Sr .

Sensitivity	Value	Units	Ref.
$\Delta_B^{(1)}/m_F B$	$-108.4(4)$	Hz/G	This work
$\Delta_B^{(2)}/B^2$	$-0.233(5)$	Hz/G ²	[45] ^a
$\Delta\kappa^T$	$6(20) \times 10^{-4}$	Hz/(U_T/E_R)	This work ^b
$\Delta\kappa^T$	$9(23) \times 10^{-4}$	Hz/(U_T/E_R)	This work ^c
κ_e^T	$5(10) \times 10^{-4}$	Hz/(U_T/E_R)	This work ^c
κ	$-3(7) \times 10^{-3}$	Hz/(U_T/E_R)	[6] ^d
$\Delta\gamma$	$7(6) \times 10^{-6}$	Hz/(U_T/E_R) ²	[12] ^d

^aMeasured for ^{88}Sr .

^bMeasured with π spectra.

^cMeasured with σ^\pm spectra.

^dMeasured with degenerate sublevels.

tion relative to the quantization axis set to minimize our sensitivity. In future measurements, use of circular trap polarization can enhance the measurement precision of $\Delta\kappa^V$ by at least two orders of magnitude.

Although only upper limits are reported here, the results can be used to estimate accuracy and linewidth limitations for lattice clocks. For example, in the absence of magnetic fields, the tensor shift can cause line broadening of the transition for unpolarized samples. Given the transition amplitudes in Fig. 4, the upper limit for line broadening, derived from the tensor shift coefficients discussed above, is 5 Hz at U_0 . The tensor shift also results in a different magic wavelength for different m_F sublevels, which is constrained here to the few picometer level.

V. COMPARISON OF THE δg MEASUREMENT WITH THEORY AND 3P_0 LIFETIME ESTIMATE

The precise measurement of δg provides an opportunity to compare various atomic hyperfine interaction theories to the experiment. To calculate the mixing parameters α_0 and β_0 [defined in Eq. (A2) of the Appendix], we first try the simplest approach using the standard Breit-Wills (BW) theory [23,24] to relate the mixing parameters to the measured triplet hyperfine splitting (HFS). The parameters α (0.9996) and β [$-0.0286(3)$] are calculated from recent determinations of the 3P_1 [32] and 1P_1 [54] lifetimes. The relevant singlet and triplet single-electron hyperfine coefficients are taken from Ref. [55]. From this calculation we find $\alpha_0 = 2.37(1) \times 10^{-4}$, $\beta_0 = -4.12(1) \times 10^{-6}$, and $\gamma_0 = -1.38(1) \times 10^{-6}$, resulting in $\delta g \mu_0 = -109.1(1)$ Hz/G. Using the mixing values in conjunction with Eq. (4) we find that the 3P_0 lifetime is 152(2) s. The agreement with the measured g factor is excellent, however the BW theory is known to have problems predicting the 1P_1 characteristics based on those of the triplet states. In this case, the BW-theory framework predicts a magnetic dipole A coefficient for the 1P_1 state of $-32.7(2)$ MHz, whereas the experimental value is $-3.4(4)$ MHz [55]. Since δg is determined mainly by the properties of the 3P_1 state, it is not surprising that the theoretical and experimental values are in good agreement. Conversely, the lifetime of the 3P_0 state depends nearly equally on the 1P_1 and 3P_1 characteristics, so the lifetime prediction deserves further investigation.

A modified BW (MBW) theory [44,55,56] was attempted to incorporate the singlet data and eliminate such discrepancies. In this case 1P_1 , 3P_1 , and 3P_2 HFS are all used in the calculation, and two scaling factors are introduced to account for differences between singlet and triplet radial wave functions when determining the HFI mixing coefficients (note that γ_0 is not affected by this modification). This method has been shown to be successful in the case of heavier elements such as neutral Hg [44]. We find $\alpha_0 = 2.56(1) \times 10^{-4}$ and $\beta_0 = -5.5(1) \times 10^{-6}$, resulting in $\delta g \mu_0 = -117.9(5)$ Hz/G and $\tau^{3P_0} = 110(1)$ s. Here, the agreement with experiment is fair, but the uncertainties in experimental parameters used for the theory are too small to explain the discrepancy.

Alternatively, we note that in Eq. (6), δg depends strongly on $\alpha_0\alpha$ and only weakly ($<1\%$) on $\beta_0\beta$, such that our mea-

surement can be used to tightly constrain $\alpha_0 = 2.35(1) \times 10^{-4}$, and then use only the triplet HFS data to calculate β_0 in the MBW theory framework. In this way we find $\beta_0 = -3.2(1) \times 10^{-6}$, yielding $\tau^{3P_0} = 182(5)$ s. The resulting 1P_1 HFS A coefficient is $-15.9(5)$ MHz, which is an improvement compared to the standard BW calculation. The inability of the BW and MBW theory to simultaneously predict the singlet and triplet properties seems to suggest that the theory is inadequate for ^{87}Sr . A second possibility is a measurement error of some of the HFS coefficients, or the ground state g factor. The triplet HFS is well resolved and has been confirmed with high accuracy in a number of measurements. An error in the ground state g -factor measurement at the 10% level is unlikely, but it can be tested in future measurements by calibrating the field in an independent way so that both g_I and δg can be measured. On the other hand, the 1P_1 HFS measurement has only been performed once using level crossing techniques, and is complicated by the fact that the structure is not resolved, and that the ^{88}Sr transition dominates the spectrum for naturally abundant samples. Present ^{87}Sr cooling experiments could be used to provide an improved measurement of the 1P_1 data to check whether this is the origin of the discrepancy.

Although one can presumably predict the lifetime with a few percent accuracy (based on uncertainties in the experimental data), the large model-dependent spread in values introduces significant additional uncertainty. Based on the calculations above (and many other similar ones) and our experimental data, the predicted lifetime is 145(40) s. A direct measurement of the natural lifetime would be ideal, as has been done in similar studies with trapped ion systems such as In^+ [39] and Al^+ [57] or neutral atoms where the lifetime is shorter, but for Sr this type of experiment is difficult due to trap lifetime limitations, and the measurement accuracy would be limited by blackbody quenching of the 3P_0 state [58].

Table II summarizes the calculations of δg and τ^{3P_0} discussed here including the HFI mixing parameters α_0 and β_0 . Other recent calculations based on the BW theory [8,9], *ab initio* relativistic many body calculations [40], and an effective core calculation [41] are given for comparison, with error bars shown when available.

VI. IMPLICATIONS FOR THE ^{87}Sr LATTICE CLOCK

In the previous sections, the magnitude of relevant magnetic and Stark shifts has been discussed. Briefly, we will discuss straightforward methods to reduce or eliminate the effects of the field sensitivities. To eliminate linear Zeeman and vector light shifts the obvious path is to use resolved sublevels and average out the effects by alternating between measurements of levels with the same $|m_F|$. Figure 9 shows an example of a spin-polarized measurement using the $m_F = \pm 9/2$ states for cancellation of the Zeeman and vector shifts. To polarize the sample, we optically pump the atoms using a weak beam resonant with the $^1S_0 - ^3P_1$ ($F=7/2$) transition. The beam is coaligned with the lattice and clock laser and linearly polarized along the lattice polarization axis (θ

TABLE II. Theoretical estimates of δg and $\tau^3 P_0$ for ^{87}Sr .

Calc.	Values used in calculation $\alpha=0.9996$, $\beta=-0.0286(3)$				
	α_0 (units of 10^{-4})	β_0 (units of 10^{-6})	$\tau^3 P_0$ (s)	$\delta g \mu_0$ $m_F(\text{Hz/G})$	$A^1 P_1$ (MHz)
BW	2.37(1)	-4.12(1)	152(2)	-109.1(1)	-32.7(2)
MBW I	2.56(1)	-5.5(1)	110(1)	-117.9(5)	-3.4(4) ^a
MBW II	2.35(1)	-3.2(1)	182(5)	-108.4(4) ^b	-15.9(5)
Ref. [40]	—	—	132	—	—
Refs. [41,59]	2.9(3)	-4.7(7)	110(30)	-130(15) ^c	—
Refs. [8,9]	—	—	159	106 ^d	—

^aExperimental value [55].^bExperimental value from this work.^cCalculated using Eq. (6).^dSign inferred from Fig. 1 in Ref. [8].

$=0$), resulting in optical pumping to the stretched ($m_F = 9/2$) states. Spectroscopy with (blue) and without (red) the polarizing step shows the efficiency of the optical pumping as the population in the stretched states is dramatically increased while excitations from other sublevels are not visible. Alternate schemes have been demonstrated elsewhere [8,26] where the population is pumped into a single $m_F = \pm 9/2$ state using the $^1S_0 - ^3P_1$ ($F=9/2$) transition. In our system, we have found the method shown here to be more efficient in terms of atom number in the final state and state purity. The highly efficient optical pumping and high spectral resolution should allow clock operation with a bias field of less than 300 mG for a 10 Hz feature while keeping line pulling effects due to the presence of the other sublevels

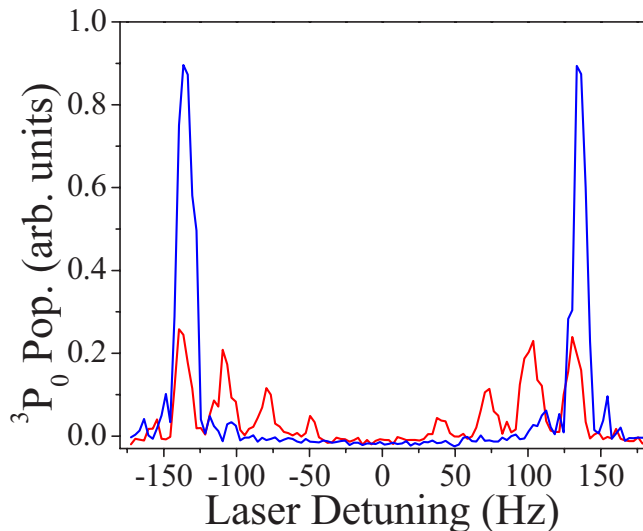


FIG. 9. (Color online) The effect of optical pumping via the 3P_1 ($F=7/2$) state is shown via direct spectroscopy with $\theta=0$. The red data shows the spectrum without the polarizing light for a field of 0.27 G. With the polarizing step added to the spectroscopy sequence the blue spectrum is observed. Even with the loss of $\sim 15\%$ of the total atom number due to the polarizing laser, the signal size of the $m_F = \pm 9/2$ states is increased by more than a factor of 4.

below 10^{-17} . The corresponding second order Zeeman shift for such a field is only ~ 21 mHz, and hence knowledge of the magnetic field at the 1% level is sufficient to control the effect below 10^{-18} . With the high accuracy δg measurement reported here, real time magnetic field calibration at the level of a few percent is trivial. For spin-polarized samples, a magic wavelength can be determined for the m_F pair, and the effect of the tensor shift will only be to modify the cancellation wavelength by at most a few picometers if a different set of sublevels are employed. With spin-polarized samples, the sensitivity to both magnetic and optical fields (including hyperpolarizability effects) should not prevent the clock accuracy from reaching below 10^{-17} .

Initial concerns that nuclear spin effects would limit the obtainable accuracy of a lattice clock have prompted a number of recent proposals to use bosonic isotopes in combination with external field induced state mixing [17,18,20–22] to replace the mixing provided naturally by the nuclear spin. In these schemes, however, the simplicity of a hyperfine-free system comes at the cost of additional accuracy concerns as the mixing fields also shift the clock states. The magnitudes of the shifts depend on the species, mixing mechanism, and achievable spectral resolution in a given system. As an example, we discuss the magnetic field induced mixing scheme [20] which was the first to be experimentally demonstrated for Yb [19] and Sr [45]. For a 10 Hz ^{88}Sr resonance (i.e., the linewidth used in this work), the required magnetic and optical fields (set to minimize the total frequency shift) result in a second order Zeeman shift of -19 Hz and an ac Stark shift from the probe laser of -19 Hz. For the same transition width, using spin-polarized ^{87}Sr , the second order Zeeman shift is less than -20 mHz for the situation in Fig. 9, and the ac Stark shift is less than 1 mHz. Although the nuclear-spin-induced case requires a short spin-polarizing stage and averaging between two sublevels, this is preferable to the bosonic isotope, where the mixing fields must be calibrated and monitored at the 10^{-5} level to reach below 10^{-17} . Other practical concerns may make the external mixing schemes favorable, if for example isotopes with nuclear spin are not readily available for the species of interest. In a lattice clock with atom-shot noise limited performance, the stability could be

improved, with a possible cost of accuracy, by switching to a bosonic isotope with larger natural abundance.

In conclusion we have presented a detailed experimental and theoretical study of the nuclear spin effects in optical lattice clocks. A perturbative approach for describing the state mixing and magnetic sensitivity of the clock states was given for a general alkaline-earth-metal (-like) system, with ^{87}Sr used as an example. Relevant Stark shifts from the optical lattice were also discussed. We described in detail our sign-sensitive measurement of the differential g factor of the 1S_0 - 3P_0 clock transition in ^{87}Sr , yielding $\mu_0 \delta g = -108.4(4)m_F \text{ Hz/G}$, as well as upper limit for the differential and exited state tensor shift coefficients $\Delta\kappa^T = 0.02 \text{ Hz}/(U_T/E_R)$ and $\kappa_e^T = 0.01 \text{ Hz}/(U_T/E_R)$. We have demonstrated a polarizing scheme which should allow control of the nuclear spin related effects in the ^{87}Sr lattice clock to well below 10^{-17} .

ACKNOWLEDGMENTS

We thank T. Ido for help during the early stages of the g -factor measurement, and G. K. Campbell and A. Pe'er for careful reading of the manuscript. This work was supported by ONR, NIST, and NSF. Andrew Ludlow acknowledges support from NSF-IGERT through the OSEP program at the University of Colorado.

APPENDIX

The Appendix is organized as follows, in the first section we briefly describe calculation of the mixing coefficients needed to estimate the effects discussed in the main text. We also include relevant Zeeman matrix elements. In the second section we describe a perturbative treatment of the magnetic field on the hyperfine-mixed 3P_0 state, resulting in a Breit-Rabi-like formula for the clock transition. In the final section we solve the more general case and treat the magnetic field and hyperfine interaction simultaneously, which is necessary to calculate the sensitivity of the 1P_1 , 3P_1 and 3P_2 states.

1. State mixing coefficients and Zeeman elements

The intermediate coupling coefficients α and β are typically calculated from measured lifetimes and transition frequencies of the 1P_1 and 3P_1 states and a normalization constraint, resulting in

$$\frac{\alpha^2}{\beta^2} = \frac{\tau_{^3P_1} \left(\frac{\nu_{^3P_1}}{\nu_{^1P_1}} \right)^3}{\tau_{^1P_1}}, \quad \alpha^2 + \beta^2 = 1. \quad (\text{A1})$$

The HFI mixing coefficients α_0 , β_0 , and γ_0 are due to the interaction between the pure 3P_0 state and the spin-orbit mixed states in Eq. (1) having the same total angular momentum F . They are defined as

$$\alpha_0 = \frac{\langle ^3P_1, F=I | H_A | ^3P_0, F=I \rangle}{\nu_{^3P_0} - \nu_{^3P_1}},$$

TABLE III. Zeeman matrix elements for pure ($^{2S+1}L_J^0$) states.

Relevant elements for the 3P_0 state:
$\langle ^3P_0, F=I H_Z ^3P_0, F=I \rangle = -g_I m_F \mu_0 B$
$\langle ^3P_0, F=I H_Z ^3P_1, F'=I \rangle = (g_s - g_I) m_F \mu_0 B \sqrt{\frac{2}{3I(I+1)}}$
$\langle ^3P_0, F=I H_Z ^3P_1, F'=I+1 \rangle = (g_s - g_I) \mu_0 B \sqrt{\frac{((I+1)^2 - m_F^2)(4I+6)}{3(I+1)(4I^2+1)-1}}$
$\langle ^3P_0, F=I H_Z ^3P_1, F'=I-1 \rangle = (g_s - g_I) \mu_0 B \sqrt{\frac{(I^2 - m_F^2)(4I-2)}{3I(4I^2-1)}}$
Relevant diagonal elements within 3P_1 manifold:
$\langle ^3P_1, F=I H_Z ^3P_1, F=I \rangle = \left(\frac{g_I + g_s - g_I[2I(I+1)-2]}{2I(I+1)} \right) m_F \mu_0 B$
$\langle ^3P_1, F=I+1 H_Z ^3P_1, F=I+1 \rangle = \left(\frac{g_I + g_s - 2g_I I}{2(I+1)} \right) m_F \mu_0 B$
$\langle ^3P_1, F=I-1 H_Z ^3P_1, F=I-1 \rangle = \left(-\frac{g_I + g_s + 2g_I(I+1)}{2I} \right) m_F \mu_0 B$
Relevant diagonal elements within 1P_1 manifold:
$\langle ^1P_1, F=I H_Z ^1P_1, F=I \rangle = \left(\frac{g_I - g_I I(I+1)-1}{I(I+1)} \right) m_F \mu_0 B$
$\langle ^1P_1, F=I+1 H_Z ^1P_1, F=I+1 \rangle = \left(\frac{g_I - g_I I}{I(I+1)} \right) m_F \mu_0 B$
$\langle ^1P_1, F=I-1 H_Z ^1P_1, F=I-1 \rangle = \left(-\frac{g_I + g_I(I+1)}{I} \right) m_F \mu_0 B$

$$\beta_0 = \frac{\langle ^1P_1, F=I | H_A | ^3P_0, F=I \rangle}{\nu_{^3P_0} - \nu_{^1P_1}},$$

$$\gamma_0 = \frac{\langle ^3P_2, F=I | H_Q | ^3P_0, F=I \rangle}{\nu_{^3P_0} - \nu_{^3P_2}}, \quad (\text{A2})$$

where H_A and H_Q are the magnetic dipole and electric quadrupole contributions of the hyperfine Hamiltonian. A standard technique for calculating the matrix elements is to relate unknown radial contributions of the wave functions to the measured hyperfine magnetic dipole (A) and electric quadrupole (Q) coefficients. Calculation of the matrix elements using BW theory [23,24,39,44,55] can be performed using the measured hyperfine splitting of the triplet state along with matrix elements provided in [24]. Inclusion of the 1P_1 data (and an accurate prediction of β_0) requires a modified BW theory [44,55,56] where the relation between the measured hyperfine splitting and the radial components is more complex but manageable if the splitting data for all of the states in the $ns np$ manifold are available. A thorough discussion of the two theories is provided in Refs. [44,55].

Zeeman matrix elements for singlet and triplet states in the $ns np$ configuration have been calculated in Ref. [24]. Table III summarizes those elements relevant to the work here, where the results have been simplified by using the electronic quantum numbers for the alkaline-earth-metal case, but leaving the nuclear spin quantum number general for simple application to different species. Note that the results include the application of our sign convention in Eq. (5) which differs from that in Ref. [24].

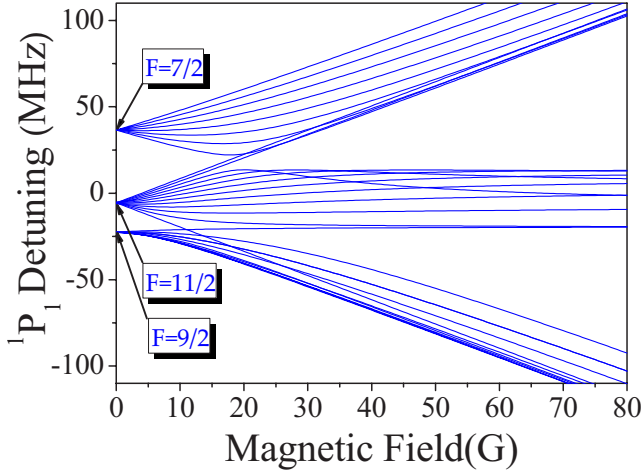


FIG. 10. (Color online) Magnetic sensitivity of the 1P_1 state calculated with the expression in Eq. (A10) using $A=-3.4$ MHz and $Q=39$ MHz [55]. Note the inverted level structure.

2. Magnetic field as a perturbation

To determine the magnetic sensitivity of the 3P_0 state due to the hyperfine interaction with the 3P_1 and 1P_1 states, we first use a perturbative approach to add the Zeeman interaction as a correction to the $|^3P_0\rangle$ state in Eq. (3). The resulting matrix elements depend on spin-orbit and hyperfine mixing coefficients α , β , α_0 , β_0 , and γ_0 . For the 3P_0 state, diagonal elements to first order in α_0 and β_0 are relevant, while for 1P_1 and 3P_1 , the contribution of the hyperfine mixing to the diagonal elements can be ignored. All off-diagonal terms of order β^2 , $\alpha_0\alpha$, $\alpha_0\beta$, α_0^2 , and smaller can be neglected. Due to the selection rules for pure (LS) states, the only contributions of the 3P_2 hyperfine mixing are of order $\alpha_0\gamma_0$, γ_0^2 , and $\beta_0\gamma_0$. Thus the state can be ignored and the Zeeman interaction matrix M_z between atomic P states can be described in the $\{|^1P_1, F, m_F\rangle, |^3P_0, F, m_F\rangle, |^3P_1, F, m_F\rangle\}$ basis as

$$M_z = \begin{pmatrix} \nu_{^1P_1} & M_{^1P_1}^{^3P_0} & 0 \\ M_{^3P_0}^{^1P_1} & \nu_{^3P_0} & M_{^3P_0}^{^3P_1} \\ 0 & M_{^3P_1}^{^3P_0} & \nu_{^3P_1} \end{pmatrix}, \quad (\text{A3})$$

where we define diagonal elements as

$$\begin{aligned} \nu_{^3P_0} &= \nu_{^3P_0}^0 + \langle ^3P_0^0 | H_Z | ^3P_0^0 \rangle \\ &\quad + 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle ^3P_0^0, F=1 | H_Z | ^3P_0^0 \rangle, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \nu_{^3P_1} &= \nu_{^3P_1}^0 + \sum_{F'} (\alpha^2 \langle ^3P_1^0, F' | H_Z | ^3P_1^0, F' \rangle \\ &\quad + \beta^2 \langle ^1P_1^0, F' | H_Z | ^1P_1^0, F' \rangle), \end{aligned}$$

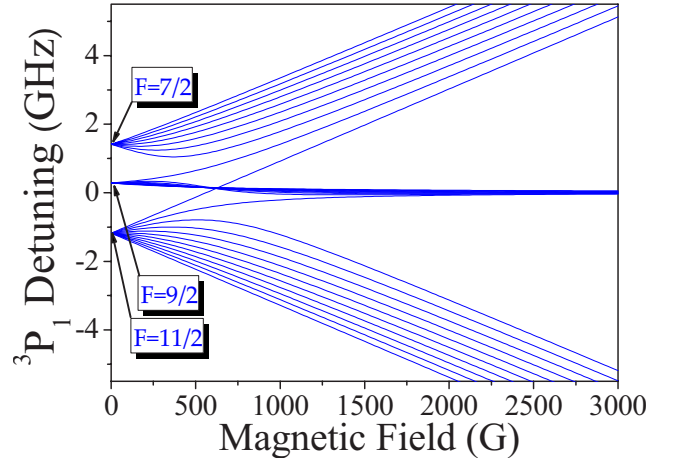


FIG. 11. (Color online) Magnetic sensitivity of the 3P_1 state calculated with the expression in Eq. (A10) using $A=-260$ MHz and $Q=-35$ MHz [61].

$$\begin{aligned} \nu_{^1P_1} &= \nu_{^1P_1}^0 + \sum_{F'} (\alpha^2 \langle ^1P_1^0, F' | H_Z | ^1P_1^0, F' \rangle \\ &\quad + \beta^2 \langle ^3P_1^0, F' | H_Z | ^3P_1^0, F' \rangle). \end{aligned} \quad (\text{A4})$$

Off diagonal elements are given by

$$M_{^3P_0}^{^3P_1} = M_{^3P_1}^{^3P_0} = \alpha \sqrt{\sum_{F'} |\langle ^3P_1^0, F' | H_Z | ^3P_0^0, F' \rangle|^2},$$

$$M_{^3P_0}^{^1P_1} = M_{^1P_1}^{^3P_0} = \beta \sqrt{\sum_{F'} |\langle ^3P_0^0, F | H_Z | ^1P_1^0, F' \rangle|^2}. \quad (\text{A5})$$

The eigenvalues of Eq. (A3) can be written analytically as three distinct cubic roots

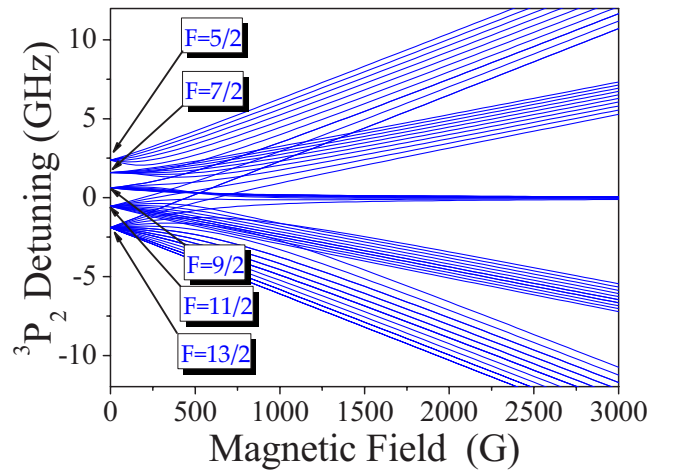


FIG. 12. (Color online) Magnetic sensitivity of the 3P_1 state calculated numerically with Eq. (A9) using $A=-212$ MHz and $Q=67$ MHz [62].

$$\begin{aligned} \nu_{m_F}^{\pm} &= \frac{\nu_0}{3} \mp \sqrt{\nu_0^2 + 3\nu_1^2} \\ &\times \cos \left[\frac{1}{3} \arccos \left(\mp \frac{2\nu_0^3 + 9\nu_0\nu_1^2 + 27\nu_2^3}{2(\nu_0^2 + 3\nu_1^2)^{3/2}} \right) \pm \frac{2\pi}{3} \right], \\ \nu_{m_F} &\equiv \nu_{^3P_0, m_F} = \frac{\nu_0}{3} + \sqrt{\nu_0^2 + 3\nu_1^2} \\ &\times \cos \left[\frac{1}{3} \arccos \left(\frac{2\nu_0^3 + 9\nu_0\nu_1^2 + 27\nu_2^3}{2(\nu_0^2 + 3\nu_1^2)^{3/2}} \right) + \frac{2\pi}{3} \right], \end{aligned} \quad (\text{A6})$$

where we have

$$\begin{aligned} \nu_0 &= \nu_{^3P_0} + \nu_{^3P_1} + \nu_{^1P_1}, \\ \nu_1 &= [-\nu_{^3P_0}\nu_{^3P_1} - \nu_{^3P_1}\nu_{^1P_1} - \nu_{^3P_0}\nu_{^1P_1} + (M_{^3P_0}^{^3P_1})^2 + (M_{^3P_0}^{^1P_1})^2]^{1/2}, \\ \nu_2 &= [\nu_{^3P_0}\nu_{^3P_1}\nu_{^1P_1} - \nu_{^3P_1}(M_{^3P_0}^{^1P_1})^2 - \nu_{^1P_1}(M_{^3P_0}^{^3P_1})^2]^{1/3}. \end{aligned} \quad (\text{A7})$$

Since the main goal is a description of the 3P_0 state sensitivity, the solution can be simplified when one considers the relative energy spacing of the three states, and that elements having terms β , $\alpha\beta$, and smaller are negligible compared to those proportional to only α . Therefore we can ignore $M_{^3P_0}^{^1P_1}$ terms and find simplified eigenvalues arising only from the interaction between 3P_1 and 3P_0 that can be expressed as a Breit-Rabi-like expression for the 3P_0 state given by

$$\begin{aligned} \nu_{^3P_0, m_F} &= \frac{1}{2}(\nu_{^3P_0} + \nu_{^3P_1}) + \frac{1}{2}(\nu_{^3P_0} - \nu_{^3P_1}) \\ &\times \sqrt{1 + 4 \frac{\sum_{F'} \alpha^2 | \langle ^3P_0, F | H_Z | ^3P_1, F' \rangle |^2}{(\nu_{^3P_0} - \nu_{^3P_1})^2}}. \end{aligned} \quad (\text{A8})$$

For magnetic fields where the Zeeman effect is small compared to the fine-structure splitting, the result is identical to that from Eq. (8) of the main text. The magnetic sensitivity

of the clock transition (plotted in Fig. 2) is determined by simply subtracting the $\langle ^3P_0^0 | H_Z | ^3P_0^0 \rangle$ term which is common to both states.

3. Full treatment of the HFI and magnetic field

For a more complete treatment of the Zeeman effect we can relax the constraint of small fields and treat the hyperfine and Zeeman interactions simultaneously using the spin-orbit mixed states in Eq. (1) as a basis. The total Hamiltonian is written $H_{\text{total}} = H_Z + H_A + H_Q$ including hyperfine H_A and quadrupole H_Q effects in addition to the Zeeman interaction H_Z defined in Eq. (5) of the main text. The Hamiltonian H_{total} can be written as

$$H_{\text{total}} = H_Z + A \vec{I} \cdot \vec{J} + Q \frac{\frac{3}{2} \vec{I} \cdot \vec{J} (2\vec{I} \cdot \vec{J} + 1) - IJ(I+1)(J+1)}{2IJ(2I-1)(2J-1)}. \quad (\text{A9})$$

Diagonalization of the full space using Eq. (A9) does not change the 3P_0 result discussed above, even for fields as large as 10^4 G. This is not surprising since the 3P_0 state has only one F level, and is therefore only affected by the hyperfine interaction through state mixing which was already accounted for in the previous calculation. Alternatively, for an accurate description of the 1P_1 , 3P_1 , and 3P_2 states, Eq. (A9) must be used. For an alkaline-earth-metal $^{2S+1}L_1$ state in the $|I, J, F, m_F\rangle$ basis we find an analytical expression for the field dependence of the $F=I, I\pm 1$ states and sublevels. The solution is identical to Eq. (A6) except we replace the frequencies in Eq. (A7) with those in Eq. (A10). We define the relative strengths of magnetic, hyperfine, and quadrupole interactions with respect to an effective hyperfine-quadrupole coupling constant $W_{AQ} = A + \frac{3Q}{4I(1-2I)}$ as $X_{BR} = \frac{\mu_0 B}{W_{AQ}}$, $X_A = \frac{A}{W_{AQ}}$, and $X_Q = \frac{Q}{I(1-2I)W_{AQ}}$, respectively. The solution is a generalization of the Breit-Rabi formula [60] for the $^{2S+1}L_1$ state in the two electron system with nuclear spin I . The frequencies are expanded in powers of X_{BR} as

$$\nu_0 = -2W_{AQ} \left(1 + \frac{3g_I}{2} m_F X_{BR} \right),$$

$$\nu_1 = W_{AQ} \sqrt{X_{\text{eff}}^{\nu_1}} \left(1 + \frac{2(g_{\text{eff}} - g_I)X_A + 3g_{\text{eff}}X_Q}{X_{\text{eff}}^{\nu_1}} m_F X_{BR} + \frac{(g_{\text{eff}} + g_I)^2 \left(1 - \frac{3m_F^2 g_I^2}{(g_{\text{eff}} + g_I)^2} \right)}{X_{\text{eff}}^{\nu_1}} X_{BR}^2 \right)^{1/2},$$

$$\nu_2 = W_{AQ} \sqrt[3]{I(I+1)X_{\text{eff}}^{\nu_2}} \left(1 + \frac{X_A^2 \left(\frac{g_{\text{eff}}}{I(I+1)} + g_I \right) + X_Q^2 \frac{3(1-2I)(3+2I)}{16} \left(\frac{g_{\text{eff}}}{I(I+1)} - g_I \right) - X_A X_Q \left[g_{\text{eff}} \left(2 - \frac{3}{2I(I+1)} \right) + g_I \right]}{X_{\text{eff}}^{\nu_2}} m_F X_{BR} \right. \\ \left. + \frac{m_F^2 X_A \frac{2g_I g_{\text{eff}}}{I(I+1)} + X_Q \frac{(g_{\text{eff}} + g_I)^2}{2} \left(1 - \frac{3m_F^2 g_{\text{eff}}^2}{I(I+1)(g_{\text{eff}} + g_I)^2} \right)}{X_{\text{eff}}^{\nu_2}} X_{BR}^2 + \frac{g_I [(g_{\text{eff}} + g_I)^2 - (g_I m_F)^2]}{I(I+1)} m_F X_{BR}^3 \right)^{1/3}, \quad (\text{A10})$$

with abbreviations

$$X_{\text{eff}}^{\nu_1} = I(I+1) \left(X_A + \frac{X_Q}{4} - I(I+1)X_Q(X_A - 1) \right) - 1,$$

$$X_{\text{eff}}^{\nu_2} = X_{\text{eff}} \left[X_Q X_{\text{eff}} + \left(X_A^2 - X_Q^2 \frac{3(3+2I)(1-2I)}{16} \right) \right],$$

$$X_{\text{eff}} = X_A + X_Q \frac{(3+2I)(1-2I)}{4},$$

$$g_{\text{eff}} = \frac{(g_I + g_s)}{2} + \frac{(g_I - g_s)}{4} [L(L+1) - S(S+1)].$$

(A11)

The resulting Zeeman splitting of the $5s5p^1P_1$ and $5s5p^3P_1$ hyperfine states in ^{87}Sr is shown in Fig. 10 and Fig. 11. For the more complex structure of 3P_2 , we have solved Eq. (A9) numerically, with the results shown in Fig. 12. The solution for the 1P_1 state depends strongly on the quadrupole (Q) term in the Hamiltonian, while for the 3P_1 and 3P_2 states the magnetic dipole (A) term is dominant.

-
- [1] S. A. Diddams *et al.*, Science **306**, 1318 (2004).
[2] M. Takamoto *et al.*, Nature (London) **435**, 321 (2005).
[3] M. M. Boyd *et al.*, Science **314**, 1430 (2006).
[4] C. W. Hoyt *et al.*, in *Proceedings of the 20th European Frequency and Time Forum*, Braunschweig, Germany, 2006, pp. 324–328.
[5] A. D. Ludlow, M. M. Boyd, T. Zelevinsky, S. M. Foreman, S. Blatt, M. Notcutt, T. Ido, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **96**, 033003 (2006).
[6] M. M. Boyd, A. D. Ludlow, S. Blatt, S. M. Foreman, T. Ido, T. Zelevinsky, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **98**, 083002 (2007).
[7] R. Le Targat, X. Baillard, M. Fouche, A. Brusch, O. Tcherbakoff, G. D. Rovera, and P. de Lemon, Phys. Rev. Lett. **97**, 130801 (2006).
[8] M. Takamoto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 10 (2006).
[9] H. Katori, M. Takamoto, V. G. Palchikov, and V. D. Ovsiannikov, Phys. Rev. Lett. **91**, 173005 (2003).
[10] V. Ovsiannikov *et al.*, Quantum Electron. **36**, 3 (2006).
[11] S. G. Porsev, A. Derevianko, and E. N. Fortson, Phys. Rev. A **69**, 021403(R) (2004).
[12] A. Brusch, R. Le Targat, X. Baillard, M. Fouche, and P. Lemonde, Phys. Rev. Lett. **96**, 103003 (2006).
[13] W. H. Oskay *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 020801 (2006).
[14] L. Childress *et al.*, Science **314**, 281 (2006).
[15] D. Hayes, P. S. Julienne, and I. H. Deutsch, Phys. Rev. Lett. **98**, 070501 (2007).
[16] I. Reichenbach and I. Deutsch, e-print arXiv:quant-ph/0702120.
[17] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. Greene, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **94**, 173002 (2005).
[18] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, and E. N. Fortson, Phys. Rev. Lett. **94**, 050801 (2005).
[19] Z. W. Barber, C. W. Hoyt, C. W. Oates, L. Hollberg, A. V. Taichenachev, and V. I. Yudin, Phys. Rev. Lett. **96**, 083002 (2006).
[20] A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, C. W. Oates, C. W. Hoyt, Z. W. Barber, and L. Hollberg, Phys. Rev. Lett. **96**, 083001 (2006).
[21] T. Zanon-Willette, A. D. Ludlow, S. Blatt, M. M. Boyd, E. Arimondo, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **97**, 233001 (2006).
[22] V. D. Ovsiannikov, V. G. Palchikov, A. V. Taichenachev, V. I. Yudin, H. Katori, and M. Takamoto, Phys. Rev. A **75**, 020501(R) (2007).
[23] G. Breit and L. A. Wills, Phys. Rev. **44**, 470 (1933).
[24] A. Lurio, M. Mandel, and R. Novick, Phys. Rev. **126**, 1758 (1962).
[25] K. R. Vogel *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **48**, 618 (1999).
[26] T. Mukaiyama, H. Katori, T. Ido, Y. Li, and M. Kuwata-Gonokami, Phys. Rev. Lett. **90**, 113002 (2003).
[27] T. H. Loftus, T. Ido, A. D. Ludlow, M. M. Boyd, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **93**, 073003 (2004).
[28] T. H. Loftus, T. Ido, M. M. Boyd, A. D. Ludlow, and J. Ye, Phys. Rev. A **70**, 063413 (2004).
[29] N. Poli, R. E. Drullinger, G. Ferrari, J. Leonard, F. Sorrentino, and G. M. Tino, Phys. Rev. A **71**, 061403(R) (2005).
[30] E. A. Curtis, C. W. Oates, and L. Hollberg, Phys. Rev. A **64**, 031403(R) (2001).
[31] T. Binnewies, G. Wilpers, U. Sterr, F. Riehle, J. Helmcke, T. E. Mehlstaubler, E. M. Rasel, and W. Ertmer, Phys. Rev. Lett. **87**, 123002 (2001).
[32] T. Zelevinsky, M. M. Boyd, A. D. Ludlow, T. Ido, J. Ye, R. Ciurylo, P. Naidon, and P. S. Julienne, Phys. Rev. Lett. **96**,

- 203201 (2006).
- [33] S. Tojo, M. Kitagawa, K. Enomoto, Y. Kato, Y. Takasu, M. Kumakura, and Y. Takahashi, Phys. Rev. Lett. **96**, 153201 (2006).
 - [34] R. Ciuryło, E. Tiesinga, S. Kotochigova, and P. S. Julienne, Phys. Rev. A **70**, 062710 (2004).
 - [35] C. Degenhardt *et al.*, Phys. Rev. A **72**, 062111 (2005).
 - [36] G. Wilpers *et al.*, Appl. Phys. B: Lasers Opt. **85**, 31 (2006).
 - [37] T. Ido, T. H. Loftus, M. M. Boyd, A. D. Ludlow, K. W. Holman, and J. Ye, Phys. Rev. Lett. **94**, 153001 (2005).
 - [38] M. V. Romalis, W. C. Griffith, J. P. Jacobs, and E. N. Fortson, Phys. Rev. Lett. **86**, 2505 (2001).
 - [39] T. Becker, J. v. Zanthier, A. Y. Nevsky, C. Schwedes, M. N. Skvortsov, H. Walther, and E. Peik, Phys. Rev. A **63**, 051802(R) (2001).
 - [40] S. G. Porsev and A. Derevianko, Phys. Rev. A **69**, 042506 (2004).
 - [41] R. Santra, K. Christ, and C. Greene, Phys. Rev. A **69**, 042510 (2004).
 - [42] L. Olschewski, Z. Phys. **249**, 205 (1972).
 - [43] H. Kopfermann, *Nuclear Moments* (Academic Press, New York, 1963).
 - [44] B. Lahaye and J. Margerie, J. Phys. (Paris) **36**, 943 (1975).
 - [45] X. Baillard *et al.*, Opt. Lett. **32**, 1812 (2007).
 - [46] S. Bize *et al.*, J. Phys. B **38**, S449 (2005).
 - [47] T. P. Heavner *et al.*, Metrologia **42**, 411 (2005).
 - [48] H. S. Margolis *et al.*, Science **306**, 1355 (2004).
 - [49] P. Dubé, A. A. Madej, J. E. Bernard, L. Marmet, J. S. Boulanger, and S. Cundy, Phys. Rev. Lett. **95**, 033001 (2005).
 - [50] T. Schneider, E. Peik, and C. Tamm, Phys. Rev. Lett. **94**, 230801 (2005).
 - [51] P. J. Blythe, S. A. Webster, H. S. Margolis, S. N. Lea, G. Huang, S. K. Choi, W. R. C. Rowley, P. Gill, and R. S. Windeler, Phys. Rev. A **67**, 020501(R) (2003).
 - [52] M. V. Romalis and E. N. Fortson, Phys. Rev. A **59**, 4547 (1999).
 - [53] A. D. Ludlow *et al.*, Opt. Lett. **32**, 641 (2007).
 - [54] P. Mickelson, Y. N. Martinez, A. D. Saenz, S. B. Nagel, Y. C. Chen, T. C. Killian, P. Pellegrini, and R. Cote, Phys. Rev. Lett. **95**, 223002 (2005).
 - [55] H. J. Kluge and H. Sauter, Z. Phys. **270**, 295 (1974).
 - [56] A. Lurio, Phys. Rev. **142**, 46 (1966).
 - [57] T. Rosenband *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 220801 (2007).
 - [58] X. Xu *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 5 (2003).
 - [59] Unpublished HFI coefficients extracted from Ref. [41], R. Santra (private communication).
 - [60] G. Breit and I. I. Rabi, Phys. Rev. **38**, 2082 (1932).
 - [61] G. zu Putlitz, Z. Phys. **175**, 543 (1963).
 - [62] S. M. Heider and G. O. Brink, Phys. Rev. A **16**, 1371 (1977).

1.6.3 [Phys. Rev. Lett. 109, 223003 \(2012\)](#)

Magic Radio-Frequency Dressing of Nuclear Spins in High-Accuracy Optical ClocksThomas Zanon-Willette,^{1,2,*} Emeric de Clercq,³ and Ennio Arimondo⁴¹*UPMC Université Paris 06, UMR 7092, LPMMA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France*²*CNRS, UMR 7092, LPMMA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France*³*LNE-SYRTE, Observatoire de Paris, CNRS, UPMC, 61 avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France*⁴*Dipartimento di Fisica "E. Fermi," Università di Pisa, Lgo. B. Pontecorvo 3, 56122 Pisa, Italy*

(Received 29 June 2012; published 30 November 2012)

A Zeeman-insensitive optical clock atomic transition is engineered when nuclear spins are dressed by a nonresonant radio-frequency field. For fermionic species as ^{87}Sr , ^{171}Yb , and ^{199}Hg , particular ratios between the radio-frequency driving amplitude and frequency lead to “magic” magnetic values where a net cancelation of the Zeeman clock shift and a complete reduction of first-order magnetic variations are produced within a relative uncertainty below the 10^{-18} level. An Autler-Townes continued fraction describing a semiclassical radio-frequency dressed spin is numerically computed and compared to an analytical quantum description including higher-order magnetic field corrections to the dressed energies.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.109.223003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.223003)

PACS numbers: 32.80.Qk, 06.30.Ft, 32.60.+i, 32.70.Jz

The interaction between magnetic fields and the nuclear or electronic magnetic moments represents a flexible tool for the control of the internal and external degrees of freedom in atoms or molecules, widely employed in precision measurements, frequency metrology, and coherent manipulations of quantum systems. In frequency metrology, the presence of magnetic fields may represent a limit on the realization of specific targets. In the attractive context of the “magic” wavelength combining a vanishing differential shift of the clock levels with the Lamb-Dicke regime greatly reducing the motional effects [1–3], the quest for magic magnetic field values where first-order Zeeman shift and magnetic fluctuation of the atomic transition are annulled, was proposed in Ref. [4] and studied experimentally in rubidium [5]. The best performances in optical clocks are accessible by using atomic transitions allowed by a weak hyperfine mixing mediated through a small spin-orbit coupling with a resolution at the millihertz level. To obtain even better performances, it has been proposed to use the bosonic even isotopes eliminating the nuclear spin and removing completely the first-order Zeeman effect with a residual second-order magnetic shift comparable to those of the ion standards [6]. However, in order to get rid of strong cold collision frequency shifts associated to the bosons, the present frequency metrology is concentrated on the fermionic species, such as ^{87}Sr [7–10], ^{171}Yb [11,12], and ^{199}Hg [13,14]. There, the first- and second-order Zeeman shifts contribute by 1 order of magnitude above the projected 10^{-18} fractional uncertainty of the frequency standard [7,9,10].

This Letter focuses on the atomic magnetic moment engineering with the target of getting rid of atomic properties sensitive to external electromagnetic fields. A scheme based on the radio-frequency (rf) quantum engineering of fermionic atomic states is presented in order to produce levels experiencing a vanishing first-order

Zeeman clock shift. The cancelation of the first-order Zeeman shift applies also to the vectorial ac Stark shift, equivalent to an effective magnetic field, the only contribution of this kind appearing in ^{171}Yb and ^{199}Hg . The basic idea of letting a paramagnetic system mimic a nonmagnetic one originates from artificial or synthetic magnetism, where an atomic Hamiltonian is created by proper electromagnetic fields in order to simulate a given magnetic configuration [15]. Our work is inspired by the dressed-atom rf quantum engineering [16], where the paramagnetic response for two species, atoms in Ref. [17] or atom or neutron in Ref. [18], is tuned into the resonance.

The cancelation of the first-order Zeeman effect is produced by the atomic dressing at a rf frequency much larger than the effective Larmor precession, equivalent to a frequency modulation of the nuclear magnetization and a shielded nuclear response to the static magnetic field. The different rf response for the ground and excited states of the clock transition leads to crossing nodes in the energy diagram, where the atoms become nonmagnetic. This change from a paramagnetic system to a nonmagnetic one shares a strong analogy with a Landau theory of phase transition. In addition, at magic static field values the rf dressing engineers a Zeeman-insensitive atomic clock. This magic cancelation arises from the nonlinear magnetic Hamiltonian associated to the rf dressing of the two-electron system. Even if the dressing does not eliminate the second-order Zeeman contribution, its contribution to clock state separation is strongly decreased by an operation at a magic magnetic field. The stability of the ratio between rf dressing amplitude and rf angular frequency required to produce a target nonmagnetic state matched to the aimed optical clock accuracy is experimentally reachable. The present approach of a magic magnetic field cannot be applied to tensorial ac shifts.

For the alkali-earth atoms, a modified Breit-Wills theory describes the action of a magnetic field B producing linear

and quadratic nuclear spin-dependent Zeeman shifts for the doubly forbidden $|^1S_0\rangle \rightarrow |^3P_0\rangle$ optical clock transition [19]. For the $|F, m_F\rangle$ Zeeman level, the energy E_{m_F} is

$$\begin{aligned} E_{P, m_F}(^3P_0) &= m_F' g_P \mu_B B + \Delta_B^{(2)} B^2, \\ E_{S, m_F}(^1S_0) &= m_F g_S \mu_B B, \end{aligned} \quad (1)$$

where m_F' and m_F are the upper and lower magnetic quantum numbers, respectively, g_P and g_S the Landé g factors, with $g_P = g_S + \delta g$, and $\Delta_B^{(2)}$ the second-order Zeeman contribution, m_F independent. We will focus our attention on fermionic systems spin polarized in the extreme Zeeman sublevels [19,20], where a systematic average on the transition frequencies of optical transitions symmetrically placed around the line center is currently applied to cancel the linear Zeeman shift and to probe accurately the second-order Zeeman correction. Their parameters are listed in the Supplemental Material [21]. The Zeeman energies of the highest $|m_F|$ ^{87}Sr clock levels versus B are plotted in Fig. 1(a).

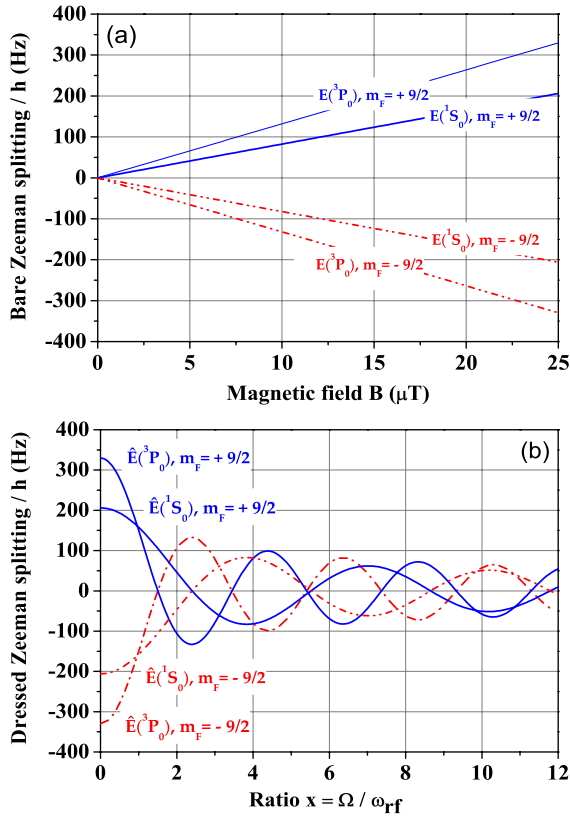


FIG. 1 (color online). (a) Bare Zeeman energy splitting E_{m_F} of the ^{87}Sr $|^1S_0; m_F = \pm 9/2\rangle$ and $|^3P_0; m_F = \pm 9/2\rangle$ clock states versus magnetic field B . (b) Dressed Zeeman energies $E_{m_F}^d(^3P_0, ^3S_0)$ versus $x = \Omega / \omega_{\text{rf}}$ at $\omega/2\pi = 2$ kHz and $B = 25 \mu\text{T}$. The crossing nodes with a zero first-order Zeeman shift determine the magic rf values.

We drive the clock atoms by a nonresonant rf field, linearly polarized and orthogonal to B , at angular frequency ω_{rf} and (ground-state) Rabi frequency Ω ; see Supplemental Material [21]. A strong modification of the Landé g factor occurs in the regime where $\mu_B B \ll \hbar \omega_{\text{rf}}$. For dressing by a large number of rf photons, a perturbative quantum analysis predicts a dressed Landé g factor dependent on the zeroth-order Bessel function of the first kind $g_j^d(x_j) = g_j J_0(x_j)$, with $x_j = \Omega_j / \omega_{\text{rf}}$, $\Omega_j = g_j \Omega / g_S$ ($j = P, S$) [22]. That dependence was verified in experiments on atoms [17,18,23], neutrons [24], and a chromium Bose-Einstein condensate [25]. It is valid for whatever spin value and equally spaced Zeeman levels [26]. When $\mu_B B \approx \hbar \omega_{\text{rf}}$, the g_j^d expression includes an additional B dependence given by [26,27]

$$g_j^d = g_j \left[J_0(x_j) - \left(\frac{g_j \mu_B B}{\hbar \omega_{\text{rf}}} \right)^2 S(x_j) \right], \quad (2)$$

$S(x)$ being a product of Bessel functions. However, for the first two crossing nodes of the rf dressed Zeeman energies of Fig. 1(b), the following approximated analytical $S(x)$ expression given by Ref. [28] provides the required accuracy:

$$S(x) = \frac{16}{2025x^4} [\alpha(x)J_2(x) + \beta(x)J_4(x) - \gamma(x)J_6(x)], \quad (3)$$

where functions are $\alpha(x) = 75(5x^2 - x^4/4)$, $\beta(x) = 6(408 - 74x^2 - 23x^4/16)$, and $\gamma(x) = 145(3x^2 - x^4/2)/49$. When the dressed Landé g factor of Eq. (2) is substituted into the energies of Eq. (1), the rf dressed energies contain both B^2 and B^3 nonlinear terms.

We derive the exact rf dressed Zeeman energies $E_{m_F}^d(j)$ from the Autler-Townes continued fraction

$$E_{m_F}^d(j) = E_{m_F}(j) + m_F \hbar \frac{\Omega}{2} \frac{g_j}{g_S} \cdot L(j). \quad (4)$$

The function L , representing the $m = 1/2$ dressed energy, normalized to the Rabi frequency [22], for a spin-1/2 system having ω_{21} energy splitting and rf dressed by a ω_{rf} field with Rabi frequency Ω , is given by [29]

$$\begin{aligned} L = & \frac{1}{L + \frac{4\omega_{21}}{\Omega} \left(1 - \frac{\omega_{\text{rf}}}{\omega_{21}}\right) - \frac{1}{L - 8\frac{\omega_{21}}{\Omega} \frac{\omega_{\text{rf}}}{\omega_{21}} - \frac{1}{L+\dots}}} \\ & + \frac{1}{L + \frac{4\omega_{21}}{\Omega} \left(1 + \frac{\omega_{\text{rf}}}{\omega_{21}}\right) - \frac{1}{L + 8\frac{\omega_{21}}{\Omega} \frac{\omega_{\text{rf}}}{\omega_{21}} - \frac{1}{L+\dots}}}. \end{aligned} \quad (5)$$

The dressed nuclear Landé g factor is obtained by deriving the dressed energies with respect to B . Evaluation of dressed energies is done by retaining only a sufficient number of the quotients in each continued fraction needed to reach the desired accuracy. In practice, nine quotients are necessary.

The dressing field strongly modifies the Zeeman energies for each m_F clock state as shown in Fig. 1(b) for a

given static field B . The energies follow mainly the zero-order Bessel function dependence. The different 1S_0 and 3P_0 sensitivity to the dressing created by δg produces several crossings between the clock energies at particular $\Omega/\omega_{\text{rf}}$ ratios. The dressed Zeeman clock shift

$$\Delta E_{m_F \rightarrow m'_F}^d = E_{m'_F}^d(^3P_0) - E_{m_F}^d(^1S_0) \quad (6)$$

is exactly compensated for by specific rf dressing parameters, for instance, in Fig. 2(a) at the $x = \Omega/\omega_{\text{rf}} \approx 0.96, 3.11, 5.44, \dots$ for a π transition. The ω_{rf} and Ω compensating values are determined by imposing the clock transition to be immune from the Zeeman shift, i.e., equal dressed magnetic energies.

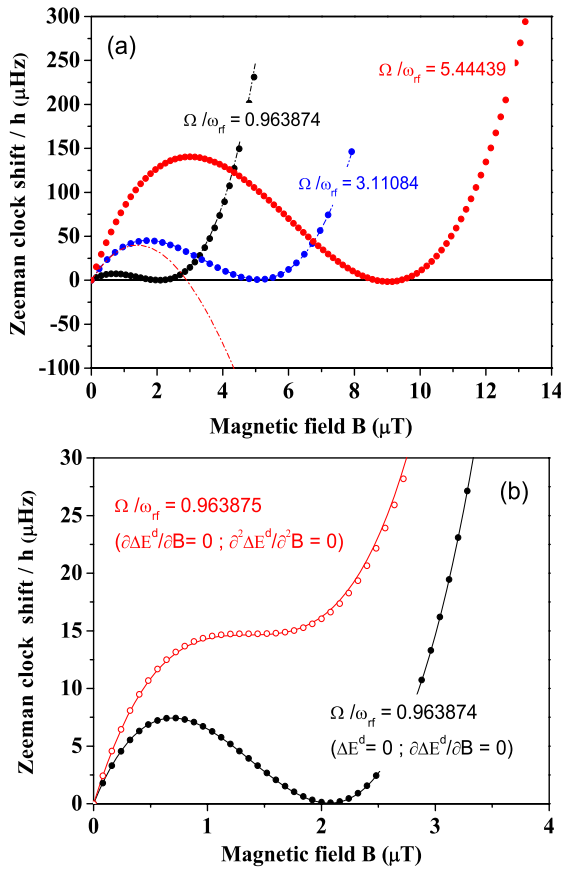


FIG. 2 (color online). ^{87}Sr dressed Zeeman shifts of the π clock transition ($m_F = -9/2$ or $m_F = 9/2$) versus B for $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz and the $\Omega/\omega_{\text{rf}}$ values at, or around, the crossing nodes in Fig. 1. The curvature around the B values of the shift minima is the dressed second-order Zeeman shift. For the (b) open red data, the x is modified by one part in 10^6 from the crossing value to a value where the second-order Zeeman shift is annulled, in the presence of constant Zeeman bias. Open and closed dots are based on Eqs. (4) and (5), respectively. Lines based on Eqs. (2) and (3) are approximated solutions providing a good description around the first two crossing nodes only. $10 \mu\text{Hz}$ corresponds to a 2×10^{-20} clock fractional shift.

A more ambitious target is to derive the magic fields where the pure-Zeeman differential shift is zero and also independent of the field value. That applies to the dressed Zeeman clock shift plotted in Fig. 2(a) with oscillations in the B dependence. At $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz and $\Omega/\omega_{\text{rf}} = 0.963874$ we have a magic magnetic field value $B_m \approx 2.1 \mu\text{T}$ which exactly cancels the full Zeeman shift for the $m_F = -9/2$, π transition, experiencing in addition a reduced $(B - B_m)^2$ sensitivity for the Zeeman energies. A reduction by 1 order of magnitude for that second-order sensitivity is obtained by operating close to the higher-order crossing nodes of Fig. 1(b), the first two also shown in Fig. 2(a) and corresponding to alternating $m_F = -9/2$ and $m_F = 9/2$ Zeeman sublevels. Figure 2(b) shows that, by changing the x parameter, a perfect cancelation of the $(B - B_m)^2$ magnetic sensitivity is reached, at the expense of a clock constant bias.

The magic (B_m, x_m) values where the Zeeman shift and the first-order sensitivity to weak field variations are simultaneously canceled are derived by imposing

$$\Delta E_{m_F \rightarrow m'_F}^d(x) = 0; \quad \left(\frac{\partial \Delta E_{m_F \rightarrow m'_F}^d}{\partial B} \right)_x = 0. \quad (7)$$

The continued fraction solution of Eqs. (4) and (5) determines the magic values associated to the above conditions. Figure 3 reports the graphical approach applied to derive these magic B_m values. Notice that a suppression cannot be realized simultaneously for more than one m_F spin-dependent transition, because the B square dependence of Eq. (2) imposes for each optical transition a matched dressed g -factor compensation.

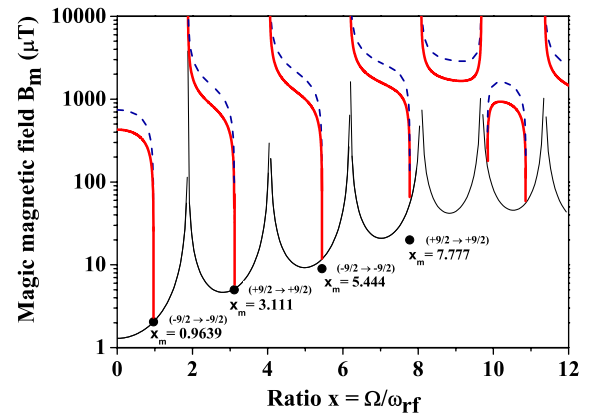


FIG. 3 (color online). (B, x) branches, derived from Eq. (7), defining a zero clock Zeeman shift $\Delta E^d = 0$ (thick solid red line) and a zero derivative $\partial \Delta E^d / \partial B = 0$ (dashed blue line) for the alternating $m_F = -9/2$ and $m_F = 9/2$ π clock transitions in ^{87}Sr . Their intersections determine the (B_m, x_m) magic values also denoted by the solid dots from a numerical evaluation of Eqs. (4) and (5). The thin solid black line dependence reports the $B(x)$ of Eq. (8), but magic B_m values occur only at magic x_m parameters. All curves are for $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz.

TABLE I. Magic (x_m, B_m) pairs for π and σ^\pm ^{87}Sr , ^{171}Yb , and ^{199}Hg optical clock transitions based on Eqs. (4) and (5), at fixed $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz. The $x_m = \Omega_m/\omega_{\text{rf}}$ values are reported here with the experimental accuracy of the Landé factor, but a fractional shift below 10^{-19} requires a six-digit resolution.

^{87}Sr					
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{9}{2} \rightarrow -\frac{9}{2}$	$+\frac{9}{2} \rightarrow +\frac{9}{2}$	$-\frac{9}{2} \rightarrow -\frac{9}{2}$	$+\frac{9}{2} \rightarrow +\frac{9}{2}$	
x_m	0.9639	3.111	5.444	7.777	
B_m (μT)	2.1	5.1	9.0	20.0	
^{171}Yb					
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	
x_m	0.9776	3.157	5.527	7.906	
B_m (μT)	0.08	0.12	0.33	0.68	
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	
x_m	1.826	4.107	5.543	6.954	
B_m (μT)	0.11	0.59	0.88	0.82	
^{199}Hg					
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	
x_m	0.9115	2.931	5.117	7.221	
B_m (μT)	0.02	0.05	0.11	0.34	
$m_F \rightarrow m_{F'}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2} \rightarrow +\frac{1}{2}$	$+\frac{1}{2} \rightarrow -\frac{1}{2}$	
x_m	1.674	3.599	4.566	6.388	
B_m (μT)	0.04	0.19	0.17	0.16	

As a good approximation, calculating the dressed energies through the effective Landé g factor of Eq. (2) we get the following expression of the magic B_m field as a function of the ω_{rf} and x_m parameters:

$$B_m(\omega_{\text{rf}}, x_m) = \frac{\hbar^3 \omega_{\text{rf}}^2 \Delta_B^{(2)} / (2\mu_B^3)}{m_{F'} g_P^3 S\left(\frac{g_P}{g_S} x_m\right) - m_F g_S^3 S(x_m)}. \quad (8)$$

Table I reports at fixed ω_{rf} few magic pairs (x_m, B_m) , at increasing B_m values, for the π polarization atomic clock of the fermionic species of present interest. The $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz choice, producing a consistent table for all the fermionic atoms, leads to very small magic field values for the mercury atom. Higher values, more easily manageable in the laboratory, are simply obtained by increasing the rf frequency and applying the Eq. (8) scaling. The accuracy of the dressed energy and the magic pairs strongly depends on the atomic parameters as tested by a numerical evaluation of the continued fraction. A complete “full-scale” calculation as reported in Refs. [4,30] would be required for accurate magic numerical values including all the digits recommended for a correct evaluation. To highlight the resolution which should be targeted for canceling the Zeeman shifts below the 10^{-19} level, we have used a six-digit resolution for figures when necessary.

The magic field values are calculated at a fixed $\Omega/\omega_{\text{rf}}$ value that implies a very large precision in the setting of the Ω and ω_{rf} parameters. For a practical application, the stability of those quantities becomes an important issue. While a very high stability of the rf frequency is not a problem, the Ω accuracy could be an issue. We have

explored the Ω stability required in the operation of an optical clock, and the results are reported in Fig. 4. A change in Ω , or precisely a change in x by one part in ten thousand, corresponds to a fractional shift of the optical clock at the 10^{-17} level. In order to reach the ultimate limit of the alkali-earth optical clocks [1], because only the x ratio of the rf quantities is important for the rf engineering, the Ω variations may be compensated for by acting on the rf frequency. Thus, a feedback on the rf frequency should reach the required ratio stability, in order to reach a 10^{-20}

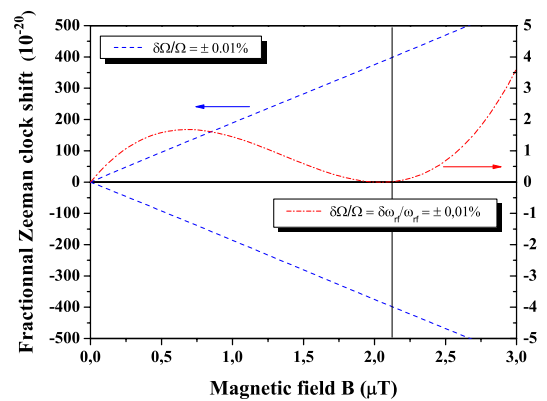


FIG. 4 (color online). Fractional clock shift, measured in 10^{-20} relative units, for the ^{87}Sr $m_F = -9/2$ π transition, for a rf amplitude fluctuation by 0.01% (left scale) and for correlated variations of the same amount applied to both amplitude and rf frequency (right scale). Operating point $x_{\text{rf}} = 0.96\dots$ and $\omega_{\text{rf}}/2\pi = 2$ kHz, leading to the magic $B = 2.1$ μT value.

level in Fig. 4. In practice, the rf stability could be matched to the actual accuracy of the optical clock. For large ω_{rf} excursions, the efficiency of this compensation is limited by the ω_{rf}^2 dependence in the B_m numerator of Eq. (8).

We have verified that the shift produced by virtual transitions induced by the rf field between the 3P fine structure levels is negligible compared to the finally aimed clock accuracy. The presence of vectorial ac shift contribution to the atomic energies introduces an additional shift of the clock levels. When the ac shift is comparable to the Zeeman shift, the key features of the rf dressing, crossing nodes, compensations of the clock shift, and magic values, are obtained also for this case, with magic (x_m, B_m) pairs depending on the specific ac shift. Schemes for the rf compensation of the ac tensorial part appearing in the ^{87}Sr optical clock only should be investigated.

The combination of well-engineered optical-trapping potential and of rf quantum engineering represents an important tool in the investigation of alkali-earth clock systematics. We have verified our scheme feasibility within the operation regime of the present optical clocks. The averaging over the Zeeman components of the optical clock transition is directly performed by the rf dressing of the atomic system. For an implementation within an optical lattice where magnetic fields are created synthetically [15], the dressing magnetic field may be originated by the rf modulation of the lattice depth, at least for frequencies low enough for an atomic adiabatic following.

The synthetic rf controlled magnetism may be applied to other atomic or molecular and solid-state physics configurations. Besides compensating the residual Zeeman contribution to a superstable optical clock based on a nuclear transition [31], the rf engineering may be applied to design an artificial quantum transition with specific Zeeman properties, as a two-level superconducting system driven by an oscillatory field [32], and to the control of spin coherent dynamics and transport in semiconductor systems [33,34].

The authors thank S. Bize, M. Glass-Maujean, A. Godone, C. Janssen, B. Laburthe-Tolra, R. Le Targat, A. D. Ludlow, and J. Ye for their inputs at different stages of this work. E. A. was supported by a MIUR PRIN-2009 grant.

*thomas.zanon@upmc.fr

- [1] J. Ye, H. J. Kimble, and H. Katori, *Science* **320**, 1734 (2008).
- [2] H. Katori, *Nat. Photonics* **5**, 203 (2011).
- [3] A. Derevianko and H. Katori, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 331 (2011).
- [4] A. Derevianko, *Phys. Rev. A* **81**, 051606(R) (2010).
- [5] R. Chicireanu, K. Nelson, S. Olmschenk, N. Lundblad, A. Derevianko, and J. Porto, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 063002 (2011).
- [6] A. V. Taichenachev, V. Yudin, C. Oates, C. Hoyt, Z. Barber, and L. Hollberg, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 083001 (2006).
- [7] A. D. Ludlow *et al.*, *Science* **319**, 1805 (2008).
- [8] P. G. Westergaard, J. Lodewyck, L. Lorini, A. Lecallier, E. Burt, M. Zawada, J. Millo, and P. Lemonde, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 210801 (2011).
- [9] A. Yamaguchi, M. Fujieda, M. Kumagai, H. Hachisu, S. Nagano, Y. Li, T. Ido, T. Takano, M. Takamoto, and H. Katori, *Appl. Phys. Express* **4**, 082203 (2011).
- [10] St. Falke *et al.*, *Metrologia* **48**, 399 (2011).
- [11] Z. W. Barber *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 103002 (2008).
- [12] N. D. Lemke, A. Ludlow, Z. Barber, T. Fortier, S. Diddams, Y. Jiang, S. Jefferts, T. Heavner, T. Parker, and C. Oates, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063001 (2009).
- [13] H. Hachisu, K. Miyagishi, S. Porsev, A. Derevianko, V. Ovsiannikov, V. Pal'chikov, M. Takamoto, and H. Katori, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 053001 (2008).
- [14] L. Yi, S. Mejri, J. J. McFerran, Y. L. Coq, and S. Bize, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 073005 (2011).
- [15] J. Dalibard, F. Gerbier, G. Juzeliūnas, and P. Öhberg, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 1523 (2011).
- [16] C. Cohen-Tannoudji and D. Guery-Odelin, *Advances in Atomic Physics: An Overview* (World Scientific, Singapore, 2011).
- [17] S. Haroche and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 974 (1970).
- [18] A. Esler, J. Peng, D. Chandler, D. Howell, S. Lamoreaux, C. Liu, and J. Torgerson, *Phys. Rev. C* **76**, 051302(R) (2007); P.-H. Chu *et al.*, *ibid.* **84**, 022501(R) (2011).
- [19] M. M. Boyd, T. Zelevinsky, A. Ludlow, S. Blatt, T. Zanon-Willette, S. Foreman, and J. Ye, *Phys. Rev. A* **76**, 022510 (2007).
- [20] X. Baillard *et al.*, *Eur. Phys. J. D* **48**, 11 (2008).
- [21] See Supplemental Material at <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevLett.109.223003> for the values of the Landé g -factors and second-order Zeeman effect.
- [22] Notice that owing to the different Landé g factor in the ground and excited states, the 3P_0 Rabi frequency is $g_P\Omega/g_S$.
- [23] S. Haroche, C. Cohen-Tannoudji, C. Audoin, and J. P. Schermann, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 861 (1970).
- [24] E. Muskat, D. Dubbers, and O. Schärpf, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2047 (1987).
- [25] Q. Beaufils, T. Zanon, R. Chicireanu, B. Laburthe-Tolra, E. Maréchal, L. Vernac, J.-C. Keller, and O. Gorceix, *Phys. Rev. A* **78**, 051603(R) (2008).
- [26] G. W. Series, *Phys. Rep.* **43**, 1 (1978).
- [27] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and C. Fabre, *J. Phys. B* **6**, L218 (1973); P. Hannaford, D. T. Pegg, and G. W. Series, *ibid.* **6**, L222 (1973).
- [28] F. Ahmad and R. K. Bullough, *J. Phys. B* **7**, L275 (1974).
- [29] S. H. Autler and C. H. Townes, *Phys. Rev.* **100**, 703 (1955).
- [30] P. Rosenbusch, S. Ghezali, V. Dzuba, V. Flambaum, K. Beloy, and A. Derevianko, *Phys. Rev. A* **79**, 013404 (2009).
- [31] C. J. Campbell, A. Radnaev, A. Kuzmich, V. Dzuba, V. Flambaum, and A. Derevianko, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 120802 (2012).
- [32] J. Tuorila, M. Silveri, M. Sillanpää, E. Thuneberg, Y. Makhlin, and P. Hakonen, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257003 (2010).
- [33] S. Q. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 187203 (2005).
- [34] J. Ohe, M. Yamamoto, T. Ohtsuki, and J. Nitta, *Phys. Rev. B* **72**, 041308(R) (2005).

Magic radio-frequency dressing of nuclear spins in high-accuracy optical clocks: Supplemental Material

Thomas Zanon-Willette^{1,2*}, Emeric de Clercq³, Ennio Arimondo⁴

¹UPMC Univ. Paris 06, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France

²CNRS, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France

³LNE-SYRTE, Observatoire de Paris, CNRS, UPMC,
61 avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France and

⁴Dipartimento di Fisica "E. Fermi", Università di Pisa, Lgo. B. Pontecorvo 3, 56122 Pisa, Italy

PACS numbers: 32.80.Ee, 42.50.Ct, 03.67.Lx

The magic values for B_m and Ω_m rely on the precise determination of the atomic parameters for the optical clock transition under investigation. In order to derive the values reported within the text of the present work, we have discovered that the published information on the required atomic parameters is some time confusing. The main target of this Supplemental Material is to make clear some notations, and to list the numerical values of the Zeeman parameters used in the calculation in order to provide a correct comparison between the dressing of the different optical clocks. In addition we precise our definition of the rf parameters in order to derive the precise value of the rf amplitude to be applied in the optical clock experiments.

We define the Rabi angular frequency Ω_j as:

$$\Omega_j = \frac{g_j \mu_B B_{rf}}{\hbar}, \quad (1)$$

where B_{rf} is the amplitude of the oscillating rf field, g_j the Landé factor of the $j = (S, P)$ level, μ_B the Bohr magneton. This angular frequency is equivalent to the Larmor frequency ω_1 defined in [1] and associated to the classical rf field amplitude. Our definition is four times larger than the frequency b introduced in [2, 3]. This explains why the coefficients of the function $S(x)$ of Eq. (3) in the main text are different of those of [3].

The linear nuclear spin dependent Zeeman shift on 3P_0 and 1S_0 states depend on the Landé factors g_S and g_P , see Eq. (1) of the main text. Their values used in the numerical calculations are listed in Table I. For the alkaline-earth-metal atoms, ^{87}Sr and ^{171}Yb , g_S is calculated from the value of the shielded nuclear magnetic moment [4]. The g_P values, $g_P = g_S + \delta g$, are obtained from the experimental values of δg , for ^{87}Sr in [5] and for ^{171}Yb in [6]. The coefficient $\Delta\nu_B^2$ of the quadratic term was experimentally measured for ^{87}Sr in [7]. That term has been measured on the fermion ^{171}Yb [6], but we use the more precise boson ^{174}Yb value of [8], since the quadratic Zeeman shifts of both isotopes should be identical, as measured for the boson [9] and fermion [7] Sr isotopes. For ^{199}Hg the g_S factor is calculated from the value of the shielded nuclear moment [10, 11], g_P was measured in [12], $\Delta\nu_B^2$ is given in [13]. A recent publication [14] gives experimental values in disagreement with these ones, but authors report that a factor 2 is probably missing (private communication). The precision of the atomic parameters is essential for a precise determination of the optical clock magic values while an experimental study of those values will lead to their better precision.

TABLE I: Atomic parameters of 1S_0 and 3P_0 fermionic states used in the main text

Atom	^{87}Sr	^{171}Yb	^{199}Hg
I	9/2	1/2	1/2
$g_S \mu_B / h$ (Hz/ μT)	1.844 [4]	-7.439 [4]	-7.590 [10]
$\delta g \mu_B / h$ (Hz/ μT)	1.084(4) [5]	-4.20[6]	-5.712
$g_P \mu_B / h$ (Hz/ μT)	2.928(4)	-11.64	-13.30 [12]
g_P / g_S ratio	1.59	1.56	1.75
$\Delta_B^{(2)} / h$ (Hz/mT ²)	-23.5(2) [7]	-6.1(1) [8]	-2.44 [13]

* E-mail address: thomas.zanon@upmc.fr

Note that the numerical values of Table I of the main text critically depend on the numerical values used for g_S and g_P (not δg only), and for $\Delta_B^{(2)}$. The comparison between the strontium, ytterbium and mercury parameters evidences that the ratio of the nuclear magnetons between excited and ground states is similar for the three species. Instead a large difference is associated to the second order Zeeman shift, being larger in strontium by a factor between four and ten. Such difference leads to the magic magnetic field values reported in the Table I of the main text at fixed ω_{rf} very low for ytterbium and mercury. For an implementation of the dressing of those atoms, it may be convenient to increase ω_{rf} and bring the magnetic fields in a range where a better control is reached.

-
- [1] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and C. Fabre, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **6**, L218 (1973).
 - [2] P. Hannaford, D. T. Pegg, and G. W. Series, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **6**, L222 (1973).
 - [3] F. Ahmad, and R. K. Bullough, J. Phys. B: At. Mol. Phys. **7**, L275 (1974).
 - [4] L. Olschewski, Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei **249**, 205 (1972).
 - [5] M.M. Boyd, T. Zelevinsky, A. D. Ludlow, S. Blatt, T. Zanon-Willette, S. M. Foreman, and J. Ye, Phys. Rev. A. **76**, 022510 (2007).
 - [6] N.D. Lemke, A. D. Ludlow, Z. W. Barber, T. M. Fortier, S. A. Diddams, Y. Jiang, S. R. Jefferts, T. P. Heavner, T. E. Parker, and C. W. Oates, Phys. Rev. Lett. **103**, 063001 (2009).
 - [7] P.G. Westergaard, J. Lodewick, L. Lorini, A. Lecallier, E. A. Burt, M. Zawada, J. Millo, and P. Lemonde, Phys. Rev. Lett. **106**, 210801 (2011).
 - [8] N. Poli, Z. W. Barber, N.D. Lemke, C. W. Oates, L. S. Ma, J. E. Stalnaker, T. M. Fortier, S. A. Diddams, J. C. Bergquist, A. Brusch, S. R. Jefferts, T. Heavner, T. Parker, Phys. Rev. A **77**, 050501(R) (2008).
 - [9] X. Baillard, M. Fouché, R. Le Targat, P. G. Westergaard, A. Lecallier, Y. Le Coq, G. D. Rovera, S. Bize, and P. Lemonde, Opt. Lett. **32** 1812 (2007).
 - [10] B. Cagnac, Ann. Phys. (Paris) **6**, 467 (1961).
 - [11] M. G. H. Gustavsson and A-M Martensson-Pendrill, Phys. Rev. A. **58**, 3611 (1998).
 - [12] B. Lahaye and J. Margerie, J. Phys. (Paris) **36**, 943 (1975).
 - [13] H. Hachisu, K. Miyagishi, S. G. Porsev, A. Derevianko, V. D. Ovsiannikov, V. G. Pal'chikov, M. Takamoto, and H. Katori, Phys. Rev. Lett. **100**, 053001 (2008).
 - [14] J. J. McFerran, L. Yi, S. Mejri, S. Di Manno, W. Zhang, J. Guéna, Y. Le Coq, and S. Bize, Phys. Rev. Lett. **108**, 183004 (2012).

1.6.4 [Phys. Rev. A 87, 023424 \(2013\)](#)

Continued-fraction analysis of dressed systems: Application to periodically driven optical lattices

Thomas Zanon-Willette,^{1,2,*} Emeric de Clercq,³ and Ennio Arimondo⁴

¹UPMC Université de Paris 06, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France

²CNRS, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, 75005 Paris, France

³LNE-SYRTE, Observatoire de Paris, CNRS, UPMC, 61 avenue de l'Observatoire, 75014 Paris, France

⁴Dipartimento di Fisica "E. Fermi", Università di Pisa, Largo B. Pontecorvo 3, 56122 Pisa, Italy

(Received 8 February 2013; published 27 February 2013)

Radio-frequency quantum engineering of spins is based on the dressing by a nonresonant electromagnetic field. Radio-frequency dressing occurs also for the motion of particles, electrons, or ultracold atoms, within a periodic spatial potential. The dressing, producing a renormalization and also a freeze of the system energy, is described by different approaches: dressed atom, magnetic resonance semiclassical treatment, and continued-fraction solution of the Schrödinger equation. A comparison between these solutions points out that the semiclassical treatment, to be denoted as the *S* solution, represents the most convenient tool to evaluate the tunneling renormalization of ultracold atoms.

DOI: [10.1103/PhysRevA.87.023424](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.87.023424)

PACS number(s): 37.10.Jk, 32.80.Qk, 31.15.xg

I. INTRODUCTION

The analysis of a system with few degrees of freedom, an electron or an atom, interacting with a large system, photons or phonons, relies often on a renormalization approach, where the parameters of the initial system are modified by the interaction. Examples of this approach are the effective mass for the electron motion in a semiconductor, or the extensive renormalization in quantum electrodynamics. Another example is the dressed atom introduced by Cohen-Tannoudji in order to describe the modification of a two-level atomic magnetic response by an applied radio-frequency (rf) field in the absence of decoherence processes [1]. For a nonresonant rf driving at a high frequency Cohen-Tannoudji and Haroche [2] derived a renormalization of the atomic level splitting dependent on the amplitude of the rf field and described by a zeroth-order ordinary Bessel function. That modification producing a magnetic “freezing” of the two-level response (i.e., a nonmagnetic system) was examined for atoms in [3–6], for a Bose-Einstein condensate of chromium in [7], for an artificial atom in [8], and recently proposed for improving the precision of optical clocks [9].

The same renormalization and freezing of the system properties under the application of a time-dependent modulation was applied to a variety of processes, all characterized by weak decoherence processes. We mention here the dynamical localization describing the renormalized motion of a charged particle within a periodic potential under a time-modulated force [10] and the coherent destruction of tunneling for a double-well potential with a periodic driving, with a complete localization of a wave packet in one well for specific values of the driving force [11]. For the motion of ultracold degenerated atomic gases within a shaken optical lattice, the tunneling atomic evolution is renormalized under the application of a time-modulated force, as proposed in [11–16] and tested experimentally in [17–22] within the framework of quantum simulation of solid-state physics. The renormalization of an

optical lattice potential acting on cold atoms in a regime of classical diffusion and transport was investigated in [23].

The target of the present work is to characterize the renormalization and freezing for a wide parameter range. The starting point is the continued-fraction solution for the two-level atomic magnetic response to an applied rf field, as typical of the nuclear magnetic resonance for a one-half spin. The regime of strong perturbation was investigated by several authors [24–28], in the presence or absence of decoherence. Their solution was expressed in terms of infinite continued fractions. The present work investigates the renormalization process through the continued-fraction approach. That treatment allows us to explore numerically the shaken-lattice renormalization for all parameter ranges, and in particular for explored experimental conditions. The numerical complexity of the continued-fraction solution, and its slow convergence in the regime of experimental interest, brought us to consider carefully the corrections to the zero-order Bessel function derived for the dressed-atom problem mainly through a semiclassical treatment [29–32], and later recovered through renormalization group techniques [33]. On the basis of the analogy between the renormalization of the magnetic resonance energy and of the atomic tunneling in optical lattice, we focus our analysis on the high-frequency regime realized for a rf modulation at a very large frequency. Then we explore the corrections when this limiting condition is not precisely satisfied. The low-frequency regime covered by the treatments of Refs. [10,14,16,34] is not examined here.

Section II presents different systems where the renormalization of the interaction strength has been investigated: magnetic resonance, motion in a periodic potential, and tunnel coupling in a periodic potential. This section reports also the standard result of the renormalization process given by the zero-order Bessel function, valid under appropriate operating conditions. Section III reports the solution for the temporal evolution of the wave function in the magnetic resonance case. Section IV derives the renormalization through the continued-fraction approach, valid for all operating conditions, and also through a semiclassical treatment refining the Bessel-function result. Section V reports numerical results determining the limiting validity of the usual zero-order Bessel correction, and derives

*thomas.zanon@upmc.fr

the renormalization for a large set of parameters. A conclusion completes our work.

II. DRESSED SYSTEMS

A. Magnetic resonance

(a) *Semiclassical approach.* For a spin-1/2 system interacting with a static magnetic field along the z axis and driven by an oscillating rf field along the x axis, the semiclassical Hamiltonian H_{sc} is

$$H_{sc} = \frac{\hbar\omega_0}{2}\sigma_z + \frac{\hbar\Omega}{2}\cos(\omega t)\sigma_x, \quad (1)$$

where $\sigma_{x,z}$ are the Pauli matrices, $\hbar\omega_0$ the energy splitting between the magnetic levels, and Ω the Rabi frequency proportional to the rf field amplitude.

By writing the atomic wave function $|\psi\rangle$ written as a superposition of the $|\pm\rangle$ atomic eigenfunctions

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{m=\pm} C_m(t)|m\rangle, \quad (2)$$

the Schrödinger equation leads to the following temporal evolution for the C_m coefficients:

$$\begin{aligned} i\dot{C}_+ &= \frac{\omega_0}{2}C_+ + \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t)C_-, \\ i\dot{C}_- &= -\frac{\omega_0}{2}C_- + \frac{\Omega}{2}\cos(\omega t)C_+. \end{aligned} \quad (3)$$

In the $\omega_0 \rightarrow 0$ limit, and for $C_+(t=0) = 1$ as initial condition, these equations have solution

$$|\psi(t)\rangle = \cos\left[\frac{\Omega}{2\omega}\sin(\omega t)\right]|+\rangle - i\sin\left[\frac{\Omega}{2\omega}\sin(\omega t)\right]|-\rangle. \quad (4)$$

As in [7,27] the result of calculating the σ_z time-averaged mean value over $|\psi\rangle$ may be expressed through the following renormalized eigenvalues of the H_{sc} Hamiltonian:

$$E_{\pm}^{\text{ren}} = \pm \frac{\hbar\omega_0}{2}\mathcal{J}_0\left(\frac{\Omega}{\omega}\right). \quad (5)$$

The introduction of a renormalization coefficient R defined by the ratio between renormalized and original eigenvalues leads to

$$\mathcal{R} = \frac{E_{\pm}^{\text{ren}}}{\pm \frac{1}{2}\hbar\omega_0} = \mathcal{J}_0\left(\frac{\Omega}{\omega}\right), \quad (6)$$

depending on the zero-order ordinary Bessel function \mathcal{J}_0 . Thus the applied sinusoidal magnetic interaction renormalizes the atomic coupling to the static magnetic field, with a reduction by the factor $\mathcal{J}_0(\frac{\Omega}{\omega})$. The effective magnetic energy is frozen whenever Ω/ω is a zero root of the \mathcal{J}_0 Bessel function, as observed in the experiments of Refs. [3–5,7]. The magnetic resonance renormalization was explored by Ref. [6] in the $\omega < \omega_0$ low-frequency regime, where the present approach is not valid.

(b) *Quantized approach.* Introducing a quantum description of the rf field, with operator a^\dagger and a for the creation and annihilation of one radio-frequency photon, the dressed-atom

Hamiltonian H_{da} of the above configuration is [35]

$$H_{da} = \hbar\omega a^\dagger a + \frac{\hbar\Omega}{\sqrt{2\bar{n}}}(a + a^\dagger)\sigma_x + \frac{\hbar\omega_0}{2}\sigma_z, \quad (7)$$

where \bar{n} represents the mean number of photons applied to the atoms.

For the high-frequency case $\omega \gg \omega_0$ the last term in H_{da} may be neglected and its eigenstates easily determined. Then a perturbation treatment for the σ_z term of that Hamiltonian leads to Eq. (5) for describing the interaction with the static field [35]. The previous renormalization result is obtained also through this approach.

Notice that the dressed-atom approach, and also the semiclassical approach of [32], demonstrated that the \mathcal{J}_0 renormalization is valid for whatever spin value and equally spaced Zeeman levels.

B. Dynamic localization

Dynamic localization was introduced by Dunlap and Kenkre [10] for the motion of an electron on a discrete one-dimensional periodic lattice with spacing d_L in the presence of an oscillating force. It is based on exact calculations for the particle motion. A single-particle basis useful for describing the electron tunneling among the discrete lattice sites is provided by the j th Wannier function centered on the j lattice site of the periodic potential [36]. In a given energy band the Hamiltonian for free motion on the periodic lattice is determined by tunneling matrix elements, which in general connect arbitrarily spaced lattice sites. However, because the hopping amplitude decreases rapidly with the distance, the tunneling Hamiltonian may be well approximated by including only the $\hbar J$ tunneling energy hopping between neighboring lattice sites. Under this hypothesis, the Hamiltonian for the electron on the linear lattice with an applied periodic force $F\cos(\omega t)$ is [10,37]

$$\begin{aligned} H_{dl} &= \hbar J \sum_m (|j\rangle\langle j+1| + |j+1\rangle\langle j|) \\ &\quad + \hbar K \cos(\omega t) \sum_j j|j\rangle\langle j|. \end{aligned} \quad (8)$$

Here $\hbar K = Fd_L$ is the time-modulated energy difference between neighboring lattice sites. Dynamic localization entails a suppression of the particle transport with the particle position oscillating in time and returning periodically to its original value. It is associated with particle motion on an infinite lattice and does not impose conditions on the frequency driving. Our focus based on the analogy with magnetic resonance is on the high-frequency driving and on a lattice with a site finite number.

For the case of two lattice sites ($j = -1/2, 1/2$), introducing the Pauli operators as $\sigma_z = |1/2\rangle\langle 1/2| - |-1/2\rangle\langle -1/2|$ and so on, the above Hamiltonian becomes [38]

$$H_{dl} = \hbar J \sigma_x + \frac{\hbar\Omega}{2}\cos(\omega t)\sigma_z, \quad (9)$$

where we have introduced $\Omega = K$ in order to emphasize the equivalence of this Hamiltonian with that of Eq. (1) apart from a change of the quantization axes and the $J \equiv \omega_0/2$ parameter correspondence. Therefore the dressed-atom renormalization

TABLE I. Values of the shaken-lattice experimental parameters, J equivalent to $\omega_0/2$, ω , $\Omega = K/\hbar$, measured in units of the recoil frequency $\omega_{\text{rec}}/2\pi$ of the investigated atom. The last column reports the ω_0/ω ratio.

Ref.	$J \equiv \omega_0/2$	ω	Ω	ω_0/ω
[17]	0.02–0.08	0.15–0.9	0–6	0.04–1.0
[18]	0.19	0.8–4	0–1.2	0.09–0.47
[19]	0.004	1.9	0–3	0.004
[20]	0.002	0.9	0–5	0.004
[22]	0.02	0.9	0–9	0.04

applies also to this system, leading to a renormalized tunneling rate,

$$J_{\text{eff}} = \mathcal{R}J. \quad (10)$$

Once again the system response is frozen whenever $\Omega/\omega = K/(\hbar\omega)$ is a root of the \mathcal{J}_0 Bessel function. The applied sinusoidal force produces a dynamic localization of the particle.

For a spin larger than one-half and more than two lattice sites, the Hamiltonian assumes a form equivalent to that of Eq. (9), except for the angular momentum. Thus the magnetic resonance analogy confirms the \mathcal{R} renormalization also for an arbitrary number of lattice sites.

C. Shaken optical lattice

In a 1D optical lattice ultracold atoms are confined within the potential minima created by a single laser standing wave with d_L spacing [39,40]. The Hamiltonian for atomic motion on the periodic lattice is determined by tunneling matrix typically including only the J hopping between neighboring lattice sites.

A periodic force $F \cos(\omega t)$ (to be referred as lattice shake) drives the atoms inside the optical lattice. Using the j th Wannier function centered on the j lattice site, the Hamiltonian of Eq. (8) describes also the motion of the ultracold atoms within the optical lattice, with $K = \Omega$ again the shaking energy difference between neighboring sites of the linear chain. Therefore the dynamic localization and the renormalization of the previous subsection applies also to the ultracold-atom shaken lattices [11–16], as tested in several experiments [17–22]. The parameters of the Hamiltonian of Eq. (9) investigated in those experiments are reported in Table I. Notice that most experiments investigated the high-frequency regime, but large deviations from that regime also occurred. Reference [41] pointed out the difficulties in the precise measurement of the tunneling freeze from the ultracold-atom images.

III. CONTINUED-FRACTION APPROACH

If a single-particle Hamiltonian is periodic in time, with period T , then the Floquet's theorem [42] states the existence of a set of distinguished solutions $|\psi_n(t)\rangle$ to the time-dependent Schrödinger equation. These Floquet states, analogous to the usual energy eigenstates of time-independent Hamiltonian operators [21,25,43], have the form

$$|\psi_n(t)\rangle = |u_n(t)\rangle \exp(-i\varepsilon_n t/\hbar), \quad (11)$$

with time periodic functions $|u_n(t)\rangle = |u_n(t+T)\rangle$. The quantum number n specifies the state. The quantities ε_n are denoted quasienergies. By inserting Eq. (11) into the Schrödinger equation governed by the H_{sc} Hamiltonian, we deduce

$$\left(H_{\text{sc}} - i\hbar \frac{\partial}{\partial t}\right) |u_n(t)\rangle = \varepsilon_n |u_n(t)\rangle, \quad (12)$$

to be regarded as an eigenvalue equation for the Floquet quasienergies. The set of Floquet functions is complete in the Hilbert space on which acts the Hamiltonian. Hence, any solution $|\psi(t)\rangle$ to the Schrödinger equation admits an expansion in the $|u_n(t)\rangle$ basis.

If $|u_n(t)\rangle$ be a solution to the eigenvalue Eq. (12) with quasienergy ε_n , then $|u_n(t)\rangle e^{im\omega t}$ also is a T -periodic solution, with quasienergy $\varepsilon_n + m\hbar\omega$ m being an arbitrary integer, where $\omega = 2\pi/T$. Therefore the quasienergy of a Floquet state is determined only up to an integer multiple of the $\hbar\omega$ photon energy. In accordance with the solid-state physics terminology, the quasienergy spectrum is said to consist of an infinite set of identical Brillouin zones of width $\hbar\omega$, covering the entire energy axis, each state placing one of its quasienergies in each zone.

The quasienergies may be determined by diagonalization of the Hamiltonian expressed in the Fourier space, as in [25], or equivalently diagonalizing the dressed-atom Hamiltonian as in [35]. We will make use of the continued-fraction solution of Refs. [24,27]. We apply the Fourier expansion to the C_{\pm} coefficients of Eq. (2)

$$C_{-}(t) = e^{i\lambda t} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} A_n e^{-in\omega t}, \quad C_{+}(t) = e^{i\lambda t} \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} B_n e^{-in\omega t}. \quad (13)$$

Substituting these expansions into Eq. (3) and equating the same order Fourier components, one obtains

$$\left(\lambda - \frac{\omega_0}{2} - n\omega\right) A_n = -\frac{\Omega}{4} B_{n-1} - \frac{\Omega}{4} B_{n+1}, \quad (14a)$$

$$\left(\lambda + \frac{\omega_0}{2} - n\omega\right) B_n = -\frac{\Omega}{4} A_{n-1} - \frac{\Omega}{4} A_{n+1}. \quad (14b)$$

These equations can be separated into a first set with all even A 's and odd B 's being zero,

$$\left(\tilde{\lambda}_{+} - \frac{4\omega_0}{\Omega} - l\frac{4\omega}{\Omega}\right) A_l = -B_{l-1} - B_{l+1}, \quad (15a)$$

$$\left(\tilde{\lambda}_{+} - k\frac{4\omega}{\Omega}\right) B_k = -A_{k-1} - A_{k+1}, \quad (15b)$$

and into a second one with all odd A 's and even B 's being zero,

$$\left(\tilde{\lambda}_{-} - k\frac{4\omega}{\Omega}\right) A_k = -B_{k-1} - B_{k+1}, \quad (16a)$$

$$\left(\tilde{\lambda}_{-} + \frac{4\omega_0}{\Omega} - l\frac{4\omega}{\Omega}\right) B_l = -A_{l-1} - A_{l+1}. \quad (16b)$$

Here we have k even, l odd, and we introduce

$$\begin{aligned} \tilde{\lambda}_{+} &= \frac{4}{\Omega} \left(\lambda + \frac{\omega_0}{2}\right), \\ \tilde{\lambda}_{-} &= \frac{4}{\Omega} \left(\lambda - \frac{\omega_0}{2}\right). \end{aligned} \quad (17)$$

Equations (15) and (16) are independent and a complete solution is obtained by adding the solutions of these equations. Equation (16) may be rewritten as

$$x_j = -\frac{x_{j-1} + x_{j+1}}{D_j} \quad (18)$$

by imposing $x_j \equiv A_j$ for even j , $x_j \equiv B_j$ for odd j , with

$$D_j \equiv \tilde{\lambda}_- + 4\omega_0/\Omega - j4\omega/\Omega \quad \text{for odd } j, \quad (19a)$$

$$D_j \equiv \tilde{\lambda}_- - j4\omega/\Omega \quad \text{for even } j. \quad (19b)$$

The recurrence Eq. (18) has a continued-fraction solution [27, 44], with expression for $j > 0$

$$\frac{x_j}{x_{j-1}} = -\frac{1}{D_j - \frac{1}{D_{j+1} - \frac{1}{D_{j+2} - \dots}}} \quad (20)$$

and similar expression for a negative j . By replacing x_1 and x_{-1} into Eq. (18) for $j = 0$, we obtain the continued-fraction solutions for $\tilde{\lambda}_+$ and $\tilde{\lambda}_-$, with

$$\begin{aligned} \tilde{\lambda}_- = & \frac{1}{\tilde{\lambda}_- + \frac{4\omega_0}{\Omega} \left(1 - \frac{\omega}{\omega_0}\right) - \frac{1}{\tilde{\lambda}_- - \frac{8\omega}{\Omega} - \frac{1}{\tilde{\lambda}_- + \frac{4\omega_0}{\Omega} \left(1 - 3\frac{4\omega}{\Omega}\right) - \dots}}} \\ & + \frac{1}{\tilde{\lambda}_- + \frac{4\omega_0}{\Omega} \left(1 + \frac{\omega}{\omega_0}\right) - \frac{1}{\tilde{\lambda}_- + \frac{8\omega}{\Omega} - \frac{1}{\tilde{\lambda}_- + \frac{4\omega_0}{\Omega} \left(1 + 3\frac{4\omega}{\Omega}\right) - \dots}}} \end{aligned} \quad (21)$$

and

$$\tilde{\lambda}_+ = -\tilde{\lambda}_-. \quad (22)$$

All Floquet quasienergies are given by

$$\varepsilon_{\pm,n} = -\hbar\lambda = \hbar \left(\pm \frac{\omega_0}{2} - \frac{\Omega}{4} \tilde{\lambda}_{\pm} \right) + n\hbar\omega. \quad (23)$$

The continued-fraction solution allows us to determine numerically the Floquet quasienergies with the required accuracy. Figure 1 reports the quasienergies within one Brillouin zone vs ω_0 for different values of the Ω/ω parameter. Those energy diagrams may be applied to analyze either magnetic resonance or dynamical localization or shaken optical lattices. The zero crossing of the energy represents magic values where the effective magnetic energy or quantum tunneling are frozen at values different from $\omega_0 = J = 0$.

IV. RENORMALIZATION VS ω_0 VALUE

The energy renormalization, to be investigated on the basis of different theoretical approaches, will be concentrated on the magnetic resonance case, but the analysis of Sec. II has demonstrated that the substitution $J = \omega_0/2$ allows us to apply our results also to the shaken optical lattices.

(a) *\mathcal{J}_0 solution.* The two-level energy splitting at $\omega \gg \omega_0$ derived in Eq. (5) by the magnetic resonance treatment leads to the \mathcal{R} renormalization given by \mathcal{J}_0 Bessel function of Eq. (6). The \mathcal{J}_0 renormalization approximation corresponds to the following quasienergies:

$$\frac{\varepsilon_{\pm,n}}{\hbar} = \pm \frac{\omega_0}{2} \mathcal{J}_0 \left(\frac{\Omega}{\omega} \right) + n\omega. \quad (24)$$

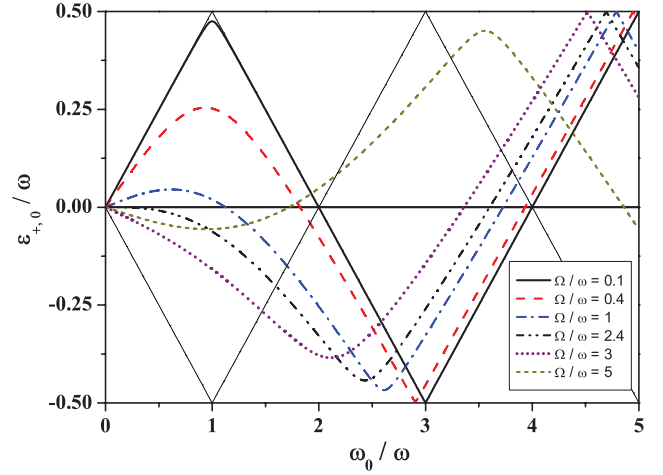


FIG. 1. (Color online) Central Brillouin zone of the quasienergy $\varepsilon_{\pm,0}$ vs ω_0 , both measured in ω units, for different values of Ω/ω , between 0 and 5. The quasienergy $\varepsilon_{-,0}$ is the opposite of $\varepsilon_{+,0}$. Quasienergies calculated by truncating the continued fraction to seven terms. Freezing occurs when the quasienergy is equal to zero at values different from $\omega_0 = 0$. For $\Omega/\omega = 2.4$ close to the \mathcal{J}_0 Bessel function first zero, owing to the quasienergy flatness at $\omega_0 \approx 0$ a nearly perfect freezing is reached in a large range of low ω_0 values.

This solution predicts a freezing for whatever ω_0 at the Ω/ω values corresponding to the zeros of the \mathcal{J}_0 Bessel function, but its validity is limited to $\omega_0 \approx 0$.

(b) *S -corrected solution.* On the basis of a magnetic resonance semiclassical treatment, Refs. [30,32] derived an ω_0 -dependent correction to the \mathcal{J}_0 renormalization. That correction leads to the following quasienergies and renormalization:

$$\frac{\varepsilon_{\pm,n}}{\hbar} = \pm \frac{\omega_0}{2} \left[\mathcal{J}_0 \left(\frac{\Omega}{\omega} \right) - \left(\frac{\omega_0}{\omega} \right)^2 S \left(\frac{\Omega}{\omega} \right) \right] + n\omega, \quad (25)$$

$$\mathcal{R} = \mathcal{J}_0 \left(\frac{\Omega}{\omega} \right) - \left(\frac{\omega_0}{\omega} \right)^2 S \left(\frac{\Omega}{\omega} \right). \quad (26)$$

Here $S(x)$ is a product of \mathcal{J}_n ordinary Bessel functions well approximated by the following expression [31]:

$$S(x) = \frac{16}{2025x^4} [\alpha(x)\mathcal{J}_2(x) + \beta(x)\mathcal{J}_4(x) - \gamma(x)\mathcal{J}_6(x)], \quad (27)$$

where $\alpha(x) = 75(5 - x^2/4)x^2$, $\beta(x) = 6(408 - 74x^2 - 23x^4/16)$, and $\gamma(x) = 145x^2(3 - x^2/2)/49$. Within the following section this solution will be used for calculations around the first and second zeros of the zeroth order Bessel function, and the validity limits for the ω_0/ω application range will be discussed there.

(c) *Continued fraction.* A general approach to derive the \mathcal{R} renormalization coefficient is based on the Floquet quasienergies derived in the previous section, leading to

$$\mathcal{R} = \frac{\varepsilon_{+,0}}{\hbar\omega_0/2}. \quad (28)$$

This equation allows a numerical determination of \mathcal{R} without restricting to the low ω_0 values where the \mathcal{J}_0 approximation

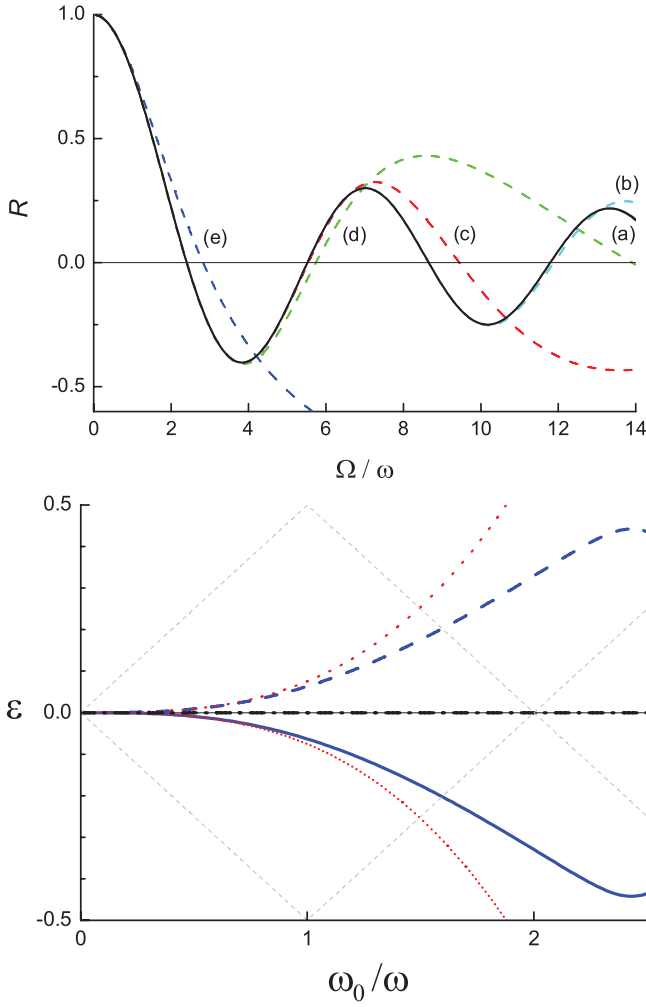


FIG. 2. (Color online) On the top \mathcal{R} vs Ω/ω calculated at $\omega_0/\omega = 0.1$ on the basis of different approximations: (a) from the continued fraction containing terms up to 9 terms, the \mathcal{J}_0 solution of Eq. (5), and the S -corrected one of Eq. (26); (b), (c), (d) and (e) from the continued fraction limited to seven, four, three, and one terms, respectively. On the bottom quasienergies $\epsilon_{+,0}$ (continuous lines) and $\epsilon_{-,0}$ (dashed lines) vs ω_0 at $\Omega/\omega = 2.405$. Thicker blue lines calculated on the basis of the four terms continued fraction; thinner red lines on the S -corrected solution. The central black horizontal dot-dashed line based on Eq. (24). Diagonal lines for the $\omega_0 \rightarrow 0$ quasienergies.

(without or with the S function) is valid. The quasienergy can be derived either from the continued-fraction solution of Eq. (20), truncated to a finite number j of terms, or from a diagonalization of the system of Eqs. (18) truncated to a finite number of equations with $2j + 1$ terms. The Hamiltonian diagonalization approach was applied in Ref. [6] for the renormalization calculations in both the low-frequency and high-frequency regimes.

V. NUMERICAL RESULTS

The \mathcal{R} renormalization coefficient is a complex function of the system parameters ω_0/ω and Ω/ω , and the previous section approaches may be used for numerical analyses at different parameter values. Figure 2(a) reports the R results at $\omega_0/\omega =$

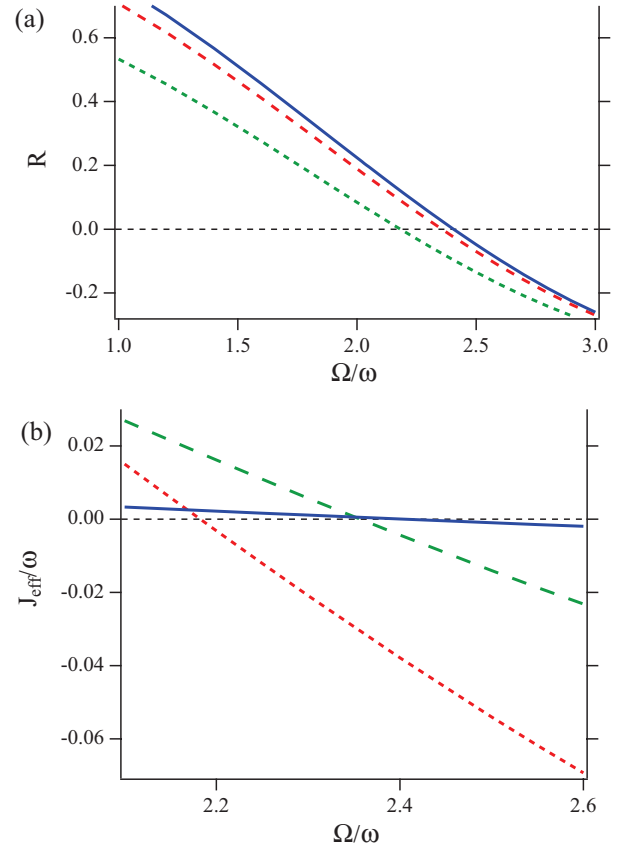


FIG. 3. (Color online) In (a) renormalization coefficient \mathcal{R} and in (b) effective tunneling \mathcal{J}_{eff} vs Ω/ω ratio for different values of J/ω . Continuous blue lines for $J/\omega = 0.02$, dashed green lines for $J/\omega = 0.2$, and dotted red lines for $J/\omega = 0.4$.

$2J/\omega = 0.1$ vs Ω/ω , obtained using Eq. (28) linking that coefficient to the Floquet quasienergies. For the quasienergies determined from the continued-fraction solution, and also from the diagonalization of the system of Eqs. (18), the results of Fig. 2(a) show a slow convergence at low ω_0 values, as already pointed out by Autler and Townes [24], the number of required terms in the continued fraction depending on the Ω/ω value. In the $\omega_0, J \rightarrow 0$ limit \mathcal{R} is well approximated by the $\mathcal{J}_0(\Omega/\omega)$ function, the S correction vanishing there.

For the quasienergies' dependence on ω_0 at $\Omega/\omega = 2.405$, Fig. 2(b) compares the continued-fraction solution to the \mathcal{J}_0 solution and the S -corrected one. The \mathcal{J}_0 solution leads to a horizontal line close to the x axis because Ω/ω corresponds to the Bessel first zero, indicating that it approximates the quasienergies only for $\omega_0 \approx 0$. On the contrary the S -corrected solution approximates well the quasienergies for a large range of parameters, at least for ω_0/ω up to 0.5 corresponding to J/ω up to 1.

For the shaken optical lattice experiments where the condition $\omega_0 = 2J \ll \omega$ is satisfied, as in most cases, the \mathcal{J}_0 solution is well appropriate for \mathcal{R} . At larger J values, the S function correction to \mathcal{J}_0 can be used for the full range of the parameters explored so far in experiments. Figure 3 reports an S -correction-based analysis of the shaken-lattice renormalization at increasing values of J/ω . For $J/\omega = 0.4$ the correction to \mathcal{R} shown in Fig. 3(a) is 10% smaller than

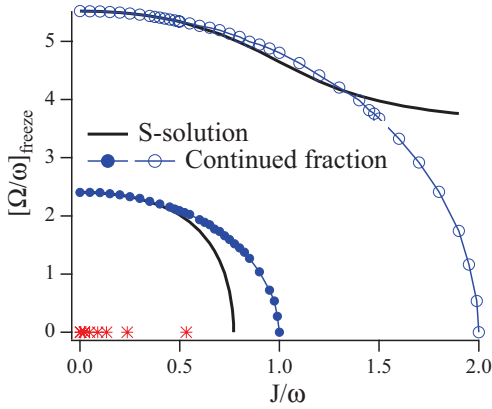


FIG. 4. (Color online) $[\Omega/\omega]_{\text{freeze}}$ values required to freeze the tunneling coefficient ($J_{\text{eff}} = 0$) as a function of the J/ω unperturbed tunneling coefficient. Continuous lines from the S -corrected expression and dots from the continued-fraction solution. Closed blue dots for the first zero crossing of the eigenenergies and open blue ones for the second zero crossing. The stars on the horizontal axis denote the J/ω values explored in the shaken optical lattice experiments.

the $J/\omega \approx 0$ value, but becomes larger increasing J . Because the most important quantity is the tunneling coefficient itself, Fig. 3(b) shows the $J_{\text{eff}} \approx 0$ dependence on Ω/ω at increasing values of J/ω . Notice that increasing J/ω the $J_{\text{eff}} = 0$ freezing configuration is reached at an Ω/ω value lower than the Bessel first zero.

Figure 4 shows the $[\Omega/\omega]_{\text{freeze}}$ values required to produce a tunneling freeze for a given J/ω initial value. We plot the values associated with the first and second zero crossing of the eigenenergies, corresponding to the first and second zero of the Bessel function within the \mathcal{J}_0 solution. A comparison between the S -corrected solution and the continued-fraction solution is presented, confirming that for most shaken-lattice experiments performed so far, the S -corrected solution provides a simple and precise determination of the modified tunneling parameter. For a larger range of parameters the continued-fraction solution should be used. The data points at $\Omega/\omega \rightarrow 0$ correspond to the quasienergy crossings in absence of rf drive and do not have a physical meaning. Notice that freezing can be produced also applying ω values lower than J ,

a regime that was not yet examined in the experiments. It may be noticed that the general dependence of the freezing value of Fig. 4 is similar, although not identical to the Bloch-Siegert shift dependence investigated in [1,2,24,25,27–32]. In fact for an applied oscillating field, as in the present magnetic resonance configuration, all the crossings and anticrossings of the energy levels are shifted towards lower ω_0 values by increasing Ω [35]. The Bloch-Siegert shift of the magnetic resonance is associated with the position of the energy anticrossings, while the freezing point is associated with the zero crossing of the eigenenergies.

VI. CONCLUSIONS

We have examined the energy renormalization of a two-level system usually associated with the dressed-atom approach, but also derivable from a semiclassical analysis of the magnetic resonance. The S solution derived in Ref. [9] for the Zeeman freezing of optical clocks is here applied to the optical lattice experiments. Within that framework the standard zero-Bessel dependence on the amplitude of the electromagnetic field amplitude, valid only at zero magnetic field, was extended to derive a general dependence on the magnetic field amplitude. That result is important for the main target of the present work, to use the magnetic resonance results in order to perform an accurate analysis of the renormalization occurring for the atomic quantum tunneling between the minima of an optical lattice in the shaken lattice experiments. The magnetic resonance correction to the energy renormalization allows us to derive a very general formula for the tunneling renormalization in shaken optical lattices. The conditions for the complete cancellation of the tunneling rate are functions of the tunneling energy without shaking and of the modulation frequency. The precise determination of the tunneling under different driving conditions will lead to a better control in the quantum simulation experiments based on optical lattices.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors are grateful to Donatella Ciampini and Michèle Glass-Maujean for a careful reading of the manuscript and suggestions.

-
- [1] C. Cohen-Tannoudji, *Atoms in Electromagnetic Fields* (World Scientific, 1994). Several of his papers are in this book and all of them available at <http://www.phys.ens.fr/~cct/>.
 - [2] C. Cohen-Tannoudji and S. Haroche, *C. R. Acad. Sci. Série B* **262**, 268 (1968).
 - [3] S. Haroche, C. Cohen-Tannoudji, C. Audoin, and J. P. Schermann, *Phys. Rev. Lett.* **24**, 861 (1970).
 - [4] E. Muskat, D. Dubbers, and O. Schärpf, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2047 (1987).
 - [5] A. Esler, J. C. Peng, D. Chandler, D. Howell, S. K. Lamoreaux, C. Y. Liu, and J. R. Torgerson, *Phys. Rev. C* **76**, 051302(R) (2007).
 - [6] P.-H. Chu *et al.*, *Phys. Rev. C* **84**, 022501(R) (2011).
 - [7] Q. Beaufils, T. Zanon, R. Chicireanu, B. Laburthe-Tolra, E. Marechal, L. Vernac, J. C. Keller, and O. Gorceix, *Phys. Rev. A* **78**, 051603(R) (2008).
 - [8] J. Tuorila, M. Silveri, M. Sillanpää, E. Thuneberg, Y. Makhlin, and P. Hakonen, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257003 (2010).
 - [9] T. Zanon-Willette, E. de Clercq, and E. Arimondo, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 223003 (2012).
 - [10] D. H. Dunlap and V. M. Kenkre, *Phys. Rev. B* **34**, 3625 (1986).
 - [11] F. Grossmann, T. Dittrich, P. Jung, and P. Hänggi, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 516 (1991).
 - [12] A. Eckardt, C. Weiss, and M. Holthaus, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 260404 (2005).

- [13] C. E. Creffield and T. S. Monteiro, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 210403 (2006).
- [14] K. Kudo, T. Boness, and T. S. Monteiro, *Phys. Rev. A* **80**, 063409 (2009).
- [15] A. Eckardt *et al.*, *Europhys. Lett.* **89**, 10010 (2010).
- [16] K. Kudo and T. S. Monteiro, *Phys. Rev. A* **83**, 053627 (2011).
- [17] H. Lignier, C. Sias, D. Ciampini, Y. Singh, A. Zenesini, O. Morsch, and E. Arimondo, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 220403 (2007).
- [18] E. Kierig, U. Schnorrberger, A. Schietinger, J. Tomkovic, and M. K. Oberthaler, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 190405 (2008).
- [19] A. Zenesini, H. Lignier, D. Ciampini, O. Morsch, and E. Arimondo, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 100403 (2009).
- [20] J. Struck, C. Ölschläger, R. Le Targat, P. Soltan-Panahi, A. Eckardt, M. Lewenstein, P. Windpassinger, and K. Sengstock, *Science* **333**, 996 (2011).
- [21] E. Arimondo, D. Ciampini, A. Eckardt, M. Holthaus, and O. Morsch, *Adv. At. Mol. Phys.* **61**, 516 (2012).
- [22] J. Struck, C. Olschlager, M. Weinberg, P. Hauke, J. Simonet, A. Eckardt, M. Lewenstein, K. Sengstock, and P. Windpassinger, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 225304 (2012).
- [23] A. Wickenbrock, P. C. Holz, N. A. Abdul Wahab, P. Phoonthong, D. Cubero, and F. Renzoni, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 020603 (2012).
- [24] S. H. Autler and C. H. Townes, *Phys. Rev.* **100**, 703 (1955).
- [25] J. H. Shirley, *Phys. Rev.* **138**, B979 (1965).
- [26] S. Morand and G. Théobald, *C. R. Acad. Sci. Paris* **269**, 1142 (1969).
- [27] S. Stenholm, *J. Phys. B* **5**, 878 (1972); **5**, 890 (1972).
- [28] S. Swain, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **22**, 387 (1985).
- [29] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and C. Fabre, *J. Phys. B* **6**, L218 (1973).
- [30] P. Hannaford, D. T. Pegg, and G. W. Series, *J. Phys. B* **6**, L222 (1973).
- [31] F. Ahmad and R. K. Bullough, *J. Phys. B* **7**, L275 (1974).
- [32] G. W. Series, *Phys. Rep.* **43**, 1 (1977).
- [33] M. Frasca, *Phys. Rev. B* **71**, 073301 (2005), and references therein.
- [34] Y. Kayanuma and K. Saito, *Phys. Rev. A* **77**, 010101R (2008).
- [35] C. Cohen-Tannoudji, in *Cargese Lectures in Physics*, Vol. 2, edited by M. Levy (Gordon and Breach, New York, 1968).
- [36] N. Ashcroft and N. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College, Philadelphia, 1976).
- [37] S. Raghavan, V. M. Kenkre, D. H. Dunlap, A. R. Bishop, and M. I. Salkola, *Phys. Rev. A* **54**, R1781 (1996).
- [38] A. Eckardt, T. Jinasundera, C. Weiss, and M. Holthaus, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 200401 (2005).
- [39] I. Bloch, *J. Phys. B* **38**, S629 (2005).
- [40] O. Morsch and M. Oberthaler, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 179 (2006).
- [41] C. E. Creffield, F. Sols, D. Ciampini, O. Morsch, and E. Arimondo, *Phys. Rev. A* **82**, 035601 (2010).
- [42] G. Floquet, *Ann. École Norm. Sup.* **12**, 47 (1883).
- [43] H. Sambe, *Phys. Rev. A* **7**, 2203 (1973).
- [44] S. Stenholm and W. Lamb, Jr., *Phys. Rev.* **181**, 618 (1969).

Bibliographie

- [1] A. Derevianko and H. Katori. [Colloquium : Physics of optical lattice clocks](#). *Rev. Mod. Phys.*, 83 :331, 2011.
- [2] V.A. Dzuba V.V. Flambaum and A. Derevianko. [Magic frequencies for cesium primary-frequency standard](#). *Phys. Rev. Lett.*, 101 :220801, 2008.
- [3] G. Breit and I.I. Rabi. [Measurement of nuclear spin](#). *Phys. Rev.*, 38 :2082, 1931.
- [4] D.A. Steck. [Cesium D Line Data, \(revision 2.1.4, 23 December 2010\)](#). available online at <http://steck.us/alkalidata>.
- [5] N. Ramsey. [Molecular beams](#). Clarendon press., Oxford, 1956.
- [6] A. Lurio, M. Mandel, and R. Novick. [Second-order hyperfine and Zeeman corrections for an \(sl\) configuration](#). *Phys. Rev.*, 126 :1758, 1962.
- [7] G.D. Rovers A. De Marchi and A. Premoli. [Pulling by neighbouring transitions and its effects on the performance of Caesium-Beam frequency Standards](#). *Metrologia*, 20 :37, 1984.
- [8] H. Marion. *CONTRÔLE DES COLLISIONS FROIDES DU CESIUM 133, TESTS DE LA VARIATION DE LA CONSTANTE DE STRUCTURE FINE À L'AIDE D'UNE FONTAINE ATOMIQUE DOUBLE RUBIDIUM-CESIUM*. Thèse de doctorat de l'Université UPMC, 2005.
- [9] F. Chapelet. *FONTAINE ATOMIQUE DOUBLE DE CESIUM ET DE RUBIDIUM AVEC UNE EXACTITUDE DE QUELQUES 10^{-16} ET APPLICATIONS*. Thèse de doctorat de l'Université Paris XI, 2008.
- [10] G. Breit and L.A. Wills. [Hyperfine structure in intermediate coupling](#). *Phys. Rev.*, 44 :470, 1933.
- [11] A. Lurio. [Configuration interaction and the hfs of the sl configuration](#). *Phys. Rev.*, 142 :46, 1966.
- [12] K.V. Christ R. Santra and C.H. Greene. [Properties of metastable alkalineearth-metal atoms calculated using an accurate effective core potential](#). *Phys. Rev. A.*, 69 :042510, 2004.
- [13] X. Baillard. *HORLOGE À RÉSEAU OPTIQUE D'ATOMES DE STRONTIUM*. Thèse de doctorat de l'Université UPMC, 2008.
- [14] A.D. Ludlow. *THE STRONTIUM OPTICAL CLOCK : OPTICAL SPECTROSCOPY WITH SUB-HERTZ ACCURACY*. Phd thesis at faculty of the graduate school of the University of Colorado, 2008.
- [15] H.J Kluge and H. Sauter. [Level crossing experiments in the first excited \$^1P_1\$ states of the alkaline earths](#). *Z. Phys.*, 270 :295, 1974.
- [16] M.M. Boyd. *HIGH PRECISION SPECTROSCOPY OF STRONTIUM IN AN OPTICAL LATTICE : TOWARDS A NEW STANDARD FOR FREQUENCY AND*

- TIME*. Phd thesis at faculty of the graduate school of the University of Colorado, 2007.
- [17] X. Baillard, M. Fouché and R. Le Targat, P.G. Westergaard, A. Lecallier, Y. Lecoq, G.D. Rovera, S. Bize, and P. Lemonde. [Accuracy evaluation of an optical lattice clock with bosonic atoms](#). *Opt. Lett.*, 232 :1812, 2007.
 - [18] X. Baillard, M. Fouché, R. Le Targat, P.G. Westergaard, A. Lecallier, F. Chapelet, M. Abgrall, G. D. Rovera, P. Laurent, S. Bize P. Rosenbusch, G. Santarelli, A. Clairon, P. Lemonde, G. Grosche, B. Lipphardt, and H. Schnatz. [An optical clock with spin-polarized \$^{87}\text{Sr}\$ atoms](#). *Eur. Phys. J. D.*, 48 :11, 2008.
 - [19] J.H. Shirley. [Solution of the Schrödinger Equation with a Hamiltonian Periodic in Time](#). *Phys. Rev.*, 138 :B979, 1965.
 - [20] S. Haroche. *ETUDE THÉORIQUE ET EXPERIMENTALE DES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES D'ATOMES EN INTERACTION AVEC DES PHOTONS DE RADIOFRÉQUENCE*. Thèse d'état de la faculté des Sciences de l'Université de Paris, 1971.
 - [21] S.H. Autler and C.H. Townes. [Stark Effect in Rapidly Varying Fields](#). *Phys. Rev.*, 100 :703, 1955.
 - [22] C. Cohen-Tannoudji, S. Haroche, C. Audoin, and J.P. Scherman. [Modified Zeeman hyperfine spectra observed in H and Rb ground states interacting with a non resonant rf field](#). *Phys. Rev. Lett.*, 24 :861, 1970.
 - [23] F. Ahmad and R.K. Bullough. [Theory of the Bloch-Siegert shift](#). *J. Phys. B.*, 7 :L275, 1974.
 - [24] Q. Beaufils, T. Zanon, R. Chicireanu, B. Laburthe-Tolra, E. Maréchal, L. Vernac, J.-C. Keller, and O. Gorceix. [Radio-frequency-induced ground-state degeneracy in a Bose-Einstein condensate of chromium atoms](#). *Phys. Rev. A*, 78 :051603(R), 2008.
 - [25] L.A. Jones, J.D. Carter, and J.D.D. Martin. [Rydberg atoms with a reduced sensitivity to dc and low-frequency electric fields](#). *Phys. Rev. A*, 87 :023423(R), 2013.
 - [26] N.D. Lemke, A.D. Ludlow, Z.W. Barber, T.M. Fortier, S.A. Diddams, Y. Jiang, S.R. Jefferts, T.P. Heavner, T.E. Parker, and C.W. Oates. [Spin 1/2 Optical Lattice Clock](#). *Phys. Rev. Lett.*, 103 :063001, 2009.
 - [27] M. Petersen. *LASER COOLING OF NEUTRAL MERCURY AND SPECTROSCOPY OF THE 1S_0 - 3P_0 OPTICAL CLOCK TRANSITION*. Thèse de doctorat de l'Université UPMC, 2009.
 - [28] J. Dalibard, F. Gerbier, G. Juzeliunas, and P. Öhberg. [Artificial gauge potentials for neutral atoms](#). *Rev. Mod. Phys.*, 83 :1523, 2011.
 - [29] F. Gerbier and J. Dalibard. [Gauge fields for ultracold atoms in optical superlattices](#). *New J. Phys.*, 12 :033007, 2010.
 - [30] D.R. Hofstadter. [Energy levels and wave functions of Bloch electrons in rational and irrational magnetic fields](#). *Phys. Rev. B.*, 14 :2239, 1976.

-
- [31] M.P. Nightingale D.J. Thouless, M. Kohmoto and M. den Nijs. [Quantized Hall Conductance in a two-dimensional periodic potential](#). *Phys. Rev. Lett.*, 49 :405, 1982.

Chapitre 2

Spectroscopie laser à 2 photons par résonance noire

Publications associées :

1. "*Ultrahigh-resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances : Exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime*", **Phys. Rev. A** **84**, 062502 (2011).
2. "*Cancelation of AC Stark-shifts in optical lattice clocks by use of pulsed Raman and electromagnetically induced transparency techniques*", **Phys. Rev. Lett.** **97**, 233001 (2006).

Lorsque la raie atomique ou moléculaire est complètement interdite car les règles de sélection s'y opposent (parité, conservation du moment cinétique, etc...), il n'y a plus de moment dipolaire électrique et on ne peut pas interroger directement la transition d'horloge. Il faut alors recourir à d'autres méthodes spectroscopiques pour activer la résonance.

Le chapitre I présentait mon activité de recherche qui portait sur l'étude théorique et la caractérisation expérimentale de la transition d'horloge fermionique du ^{87}Sr . La théorie du couplage intermédiaire d'un alcalino-terreux permet d'obtenir une estimation de la durée de vie du niveau métastable 3P_0 du strontium de l'ordre de 160 s, c'est à dire une largeur de résonance inférieure à 10 mHz. Le facteur de qualité de la résonance atomique est ainsi proche de $5 \cdot 10^{17}$, ce qui fait du strontium un candidat de très grande qualité métrologique pour les nouveaux étalons de fréquence optique. En pratique cependant, le facteur de qualité est déterminé par la largeur expérimentale de la transition qui est limitée par d'autres facteurs, comme la durée de vie des atomes dans le piège dipolaire, ou encore la largeur de raie du laser d'horloge qui interroge la transition. De nombreux efforts sont entrepris aujourd'hui pour améliorer la stabilité relative de fréquence de l'horloge au niveau de quelques 10^{-16} sur la seconde [1] en améliorant par exemple la stabilité mécanique et en réduisant davantage les contraintes thermiques exercées par la pression de radiation

laser sur les miroirs de la cavité Fabry-Perot ou en étudiant la stabilisation en fréquence d'un laser sur une résonance optique d'un ion inséré dans une matrice cristalline refroidie à très basse température [2]. Parallèlement à tous ces développements techniques, il est également intéressant d'éliminer autant que possible des effets qui peuvent dégrader la stabilité ultime de l'horloge optique : L'absence du spin nucléaire dans l'espèce bosonique ^{88}Sr du strontium permet de s'affranchir naturellement d'un certain nombre de problèmes liés par exemple aux fluctuations de polarisation du laser réalisant le piège dipolaire et offre la possibilité d'envisager des facteurs de qualité de résonance bien supérieurs à 10^{18} .

Dans ce contexte, ce chapitre présente les outils que j'ai développés pendant plusieurs années afin de construire une nouvelle horloge optique capable d'interroger une transition d'horloge complètement interdite à un photon sur un ensemble d'atomes neutres de ^{88}Sr piégés dans un réseau dipolaire. Cette horloge utilise le principe de la spectroscopie impulsionnelle par transparence induite électromagnétiquement à deux photons avec le double objectif d'activer artificiellement une transition atomique non autorisée et d'éliminer le déplacement lumineux qui perturbe la fréquence d'horloge.

Ce chapitre présente également mes travaux de recherche théoriques et expérimentaux en spectroscopie atomique à 2 photons par résonance noire. Ils combinent à la fois le phénomène d'interférences quantiques à plusieurs champs lasers cohérents avec la technique de spectroscopie de Ramsey réalisée par des impulsions laser à double résonance optique et séparées temporellement. Le chapitre est divisé en plusieurs parties qui constituent un cadre structurant un programme complet de recherche et de développement d'une future horloge optique de très grande exactitude reposant sur :

1. ***La spectroscopie de Ramsey et son impact sur la résolution des mesures de fréquences atomiques.*** En appliquant un formalisme matriciel pour décrire l'évolution temporelle d'une fonction d'onde atomique de Schrödinger, on montre que le déphasage accumulé pendant le vol libre de l'atome entre les deux impulsions de Ramsey peut être complètement contrôlé afin de réduire fortement les fluctuations d'amplitude du champ oscillant sur la qualité de la mesure de la fréquence atomique. La séquence d'impulsions laser pilotée par l'aire des impulsions, la phase et la fréquence des lasers permet de modifier le déplacement lumineux ou de "renormaliser" la polarisabilité électrique qui affecte les états atomiques interagissant avec un champ de photons optiques.
2. ***L'utilisation d'une interaction laser résonnante à 2 photons de type E1M1 pour observer la transition d'horloge optique du strontium bosonique.*** L'absence de spin nucléaire nous oblige à abandonner l'excitation directe pour appliquer un processus à deux photons entre les états atomiques $^1S_0 \leftrightarrow ^1P_1 \leftrightarrow ^3P_0$. La combinaison de la technique d'interrogation de Ramsey avec le phénomène de piégeage cohérent de population permet de réaliser des mesures de très haute exactitude en fréquence en spectroscopie par franges de résonance noire. Mes travaux ont permis d'étudier en détail le déphasage accumulé par la cohérence quantique Ra-

man induite entre états atomiques de l'horloge et de le manipuler pour produire une résonance atomique qui n'est pas affectée par un déplacement de fréquence provoqué par le laser d'interrogation. Ces travaux reposent sur le formalisme de la matrice densité qui s'impose naturellement dans le cadre de la spectroscopie laser sur des systèmes atomiques à 3 niveaux d'énergie. Je l'ai étendu aux transitions à 2 photons de type Raman et à la spectroscopie induite magnétiquement en ajoutant un couplage artificiel avec un autre état radiativement instable.

3. *La première démonstration expérimentale d'un asservissement de fréquence de faisceaux laser séparés par 430 THz.* En menant, au JILA, la construction complète d'un montage expérimental combinant les méthodes de l'optique non-linéaire de synthèse de fréquence à travers un cristal, j'ai réalisé la première démonstration de stabilisation d'une différence de fréquence optique à 430 THz à l'aide d'un battement de fréquence entre un laser infrarouge à $1.3\ \mu\text{m}$, un laser bleu à 461 nm et un laser d'horloge à 698 nm.

Tous ces travaux ont été suivis par la publication, dans la revue *Physical Review Letter* en 2006, d'une nouvelle méthode spectroscopique destinée à éliminer les déplacements lumineux associés aux transitions à 2 photons puis d'un article de synthèse sur le profil exact de la résonance noire en régime continu et impulsif dans *Physical Review A* en 2011.

2.1 Probabilité de transition Ramsey et Hyper-Ramsey

N.F. Ramsey a proposé en 1950 une méthode d'interrogation des atomes reposant sur une séquence d'impulsions radiofréquences séparées spatialement [3] pour améliorer la précision des mesures des fréquences atomiques de Bohr dans les expériences où l'on irradiait des jets moléculaires avec des hyperfréquences [4]. Elle repose sur une double excitation des atomes ou des molécules par un champ micro-onde. L'édifice atomique présente dans ce domaine énergétique une durée de vie très longue qui réalise en pratique le système quantique idéal pour l'interrogation de type Ramsey. Appliquée originellement aux alcalins (^{133}Cs , ^{87}Rb) pour la réalisation d'horloges atomiques de haute performance, elle fût ensuite généralisée au domaine optique sur des atomes neutres comme le calcium, le magnésium ou sur des ions comme l'yttrium, le mercure et l'indium.

2.1.1 Excitation de Rabi

En 1939, I. Rabi avait proposé la méthode d'une impulsion de durée variable appliquée en résonance magnétique des spins nucléaires sur des jets thermiques moléculaires pour en mesurer les propriétés atomiques fondamentales. Rabi étudiait les transitions dans le domaine des radiofréquences où la relaxation par émission spontanée est pratiquement inexistante [4]. Les molécules que l'on peut représenter comme des systèmes à 2 niveaux d'énergie peuvent être portées dans l'état excité pendant des temps beaucoup plus longs

que la durée de la traversée du spectromètre. En faisant varier l'accord entre la fréquence micro-onde de l'appareil par rapport à la fréquence naturelle de Bohr des atomes, Rabi reconstruit le spectre des transitions radiofréquences avec une résolution donnée par l'inverse de la durée de l'interaction τ avec le champ excitateur. Comme la molécule n'interagit que pendant un temps limité avec l'onde électromagnétique, la transformée de Fourier de l'interaction que l'on appelle une impulsion Rabi s'étale sur une échelle de fréquences limitée de l'ordre de $2\pi/\tau$.

2.1.2 Probabilité de transition Hyper-Ramsey (Ramsey)

N.F. Ramsey attaque le problème sous un autre angle. Il propose d'appliquer deux impulsions de durée τ séparées spatialement par une zone libre de durée de vol T sans interaction avec le champ excitateur [3]. Il en résulte des franges d'interférences espacées d'un écart en fréquence $2\pi/T$ entre la fréquence à laquelle les molécules sont forcées pendant l'interaction et la fréquence d'oscillation naturelle pendant le vol libre. On mesure les variations des populations du système moléculaire à la fin de la seconde zone d'interaction. Pour réduire la largeur des raies, Ramsey fait passer le jet atomique successivement dans deux cavités, alimentées symétriquement par le même guide d'onde afin d'assurer une phase identique du champ électrique ou magnétique dans chaque zone d'interaction. A l'arrivée, une "séparatrice", c'est à dire un aimant de type Stern et Gerlach était utilisée pour séparer puis mesurer les populations atomiques après la traversée de la cavité. Les probabilités de transition de Rabi et de Ramsey peuvent être évaluées de multiples façons. On peut les décrire par la fonction d'onde de Schrödinger [3], on peut également introduire de nouvelles variables pour décrire la rotation d'un spin fictif appelé vecteur de Bloch sous l'effet du champ micro-onde ou laser [5, 6, 7, 8]. On peut aussi décrire les franges de Ramsey d'un point de vue interférométrique, en introduisant la quantification des états externes des fonctions d'ondes responsables des interférences entre paquets d'ondes atomiques séparés par effet de recul lors de l'absorption du photon [9, 10]. Je présente ici le calcul de la fonction d'onde de Schrödinger d'un point de vue matriciel qui permet de remonter aux probabilités de transition en séparant le terme d'enveloppe des franges et le terme de déphasage. Dans son article original de 1950, Norman Ramsey avait établi une probabilité de transition écrite sous une forme très compacte qui ne faisait pas clairement apparaître le rôle de la phase atomique [3, 11]. On reprend le calcul initial de son article [3] afin d'évaluer la probabilité de transition associée à la fonction d'onde $|\Psi(t)\rangle$ de l'atome mais on considère deux impulsions d'aires ou de durées différentes. En suivant la référence [12], après approximation séculaire et passage en représentation des ondes tournantes, la fonction d'onde atomique $|\Psi\rangle$ se décompose sur les niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ de la manière suivante :

$$|\Psi(t)\rangle = c_1(t)|1\rangle + c_2(t)|2\rangle \quad (2.1)$$

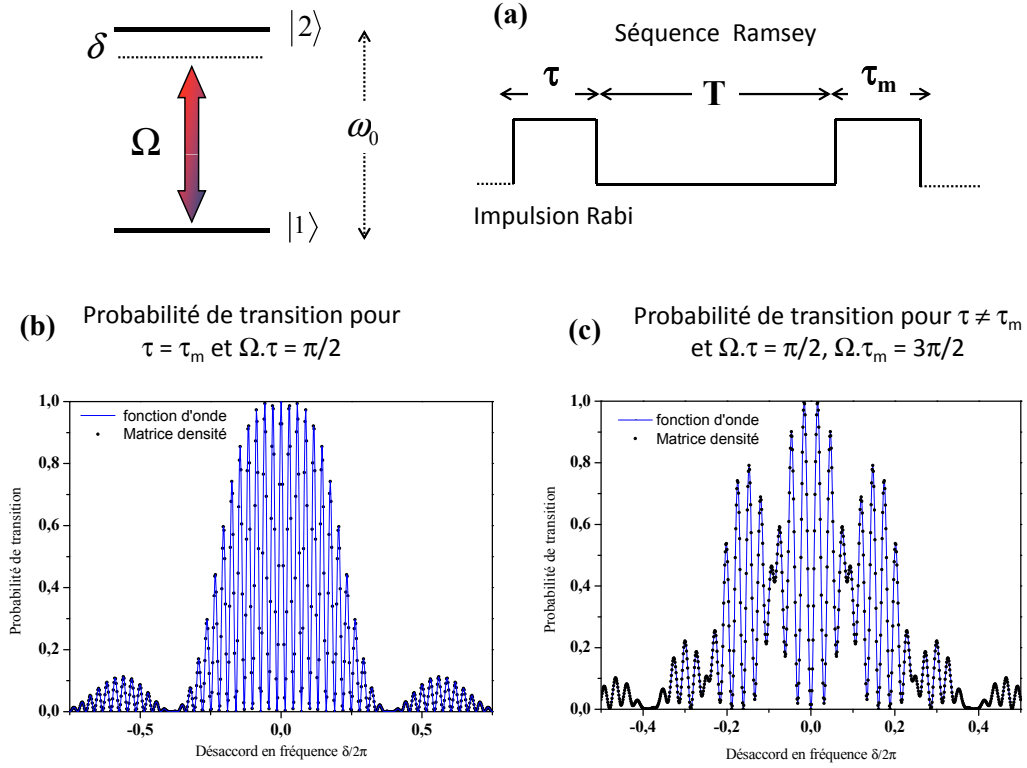


FIGURE 2.1 – Atome à 2 niveaux d'énergie. (a) Séquence d'interrogation de Ramsey. (b) Probabilité de transition Ramsey lorsque $\tau = \tau_m$. (c) Probabilité de transition Hyper-Ramsey lorsque $\tau \neq \tau_m$. On compare l'expression analytique provenant de l'équation Eq. (2.11) (courbe continu) avec une simulation numérique (points \bullet) d'un système à 2 niveaux effectuée à l'aide de la matrice densité.

où les évolutions temporelles des amplitudes $c_1(t), c_2(t)$ sont pilotées par l'équation :

$$\begin{cases} \dot{c}_1(t) = i\Omega/2 c_2(t) \\ \dot{c}_2(t) = i\Omega/2 c_1(t) + i\delta c_2(t) \end{cases} \quad (2.2)$$

avec l'expression du désaccord introduite par $\delta = \omega_L - \omega_0$, ω_L la pulsation du laser, ω_0 la pulsation d'horloge et Ω l'amplitude du champ exciteur. Les solutions peuvent être écrites sous la forme d'une matrice 2×2 couplant les états avant et après interaction avec le champ électromagnétique comme [3] :

$$\begin{pmatrix} c_1(t) \\ c_2(t) \end{pmatrix} = \chi(t) \cdot \begin{pmatrix} M_+(t) & M_+(t) \\ M_-(t) & M_-(t) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(0) \\ c_2(0) \end{pmatrix} \quad (2.3)$$

avec un facteur de phase $\chi(t)$ et les éléments de matrice :

$$\begin{aligned} M_+(t) &= \left\{ \cos\left(\frac{\omega_{eff}}{2}t\right) + i\frac{\delta}{\Omega} \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}t\right) \right\} \\ M_-(t) &= \left\{ \cos\left(\frac{\omega_{eff}}{2}t\right) - i\frac{\delta}{\Omega} \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}t\right) \right\} \\ M_{\dagger}(t) &= i\frac{\Omega}{\omega_{eff}} \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}t\right) \end{aligned} \quad (2.4)$$

On définit la pulsation :

$$\omega_{eff}^2 = \delta^2 + \Omega^2 \quad (2.5)$$

et le facteur de phase :

$$\chi(t) = \exp[-i\delta t/2] \quad (2.6)$$

La séquence d'interrogation de Ramsey s'écrit en décomposant chaque étape d'interaction :

-Première impulsion Rabi de durée τ :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau) \\ c_2(\tau) \end{pmatrix} = \chi(\tau) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau) & M_{\dagger}(\tau) \\ M_{\dagger}(\tau) & M_-(\tau) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(0) \\ c_2(0) \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

-Temps d'évolution T en absence de champ laser :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau, T) \\ c_2(\tau, T) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp[-i\delta T] \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(\tau) \\ c_2(\tau) \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

-Seconde impulsion Rabi de durée τ_m :

$$\begin{pmatrix} c_1(2\tau, T, \tau_m) \\ c_2(2\tau, T, \tau_m) \end{pmatrix} = \chi(\tau_m) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau_m) & M_{\dagger}(\tau_m) \\ M_{\dagger}(\tau_m) & M_-(\tau_m) \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(\tau, T) \\ c_2(\tau, T) \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

La solution générale est un produit de matrices qui dépend des conditions initiales sur les populations $c_1(0)$ et $c_2(0)$ et des temps d'interactions τ et T :

$$\begin{pmatrix} c_1(\tau, T, \tau_m) \\ c_2(\tau, T, \tau_m) \end{pmatrix} = \chi(\tau)\chi(\tau_m) \cdot \begin{pmatrix} M_+(\tau)M_+(\tau_m) & M_{\dagger}(\tau_m)M_+(\tau) \\ +M_{\dagger}(\tau_m)M_{\dagger}(\tau)\exp[-i\delta T] & +M_{\dagger}(\tau_m)M_-(\tau)\exp[-i\delta T] \\ M_{\dagger}(\tau_m)M_+(\tau) & M_{\dagger}(\tau_m)M_{\dagger}(\tau) \\ +M_{\dagger}(\tau_m)M_-(\tau)\exp[-i\delta T] & +M_-(\tau_m)M_-(\tau)\exp[-i\delta T] \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} c_1(0) \\ c_2(0) \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

On peut écrire les populations P_{ii} des niveaux $|1\rangle$ et $|2\rangle$ en séparant l'enveloppe des franges du terme de déphasage accumulé au cours de l'évolution libre de durée T . Pour cela, on introduit la notation suivante :

$$P_{ii}(\tau, T, \tau_m) = |\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)|^2 \cdot \left| 1 + \beta_{ii}(\tau, \tau_m) e^{-i(\delta T - \Phi_{ii}(\tau, \tau_m))} \right|^2 \quad (2.11)$$

On peut maintenant identifier l'enveloppe des franges $|\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)|^2$, un facteur de forme des franges $\beta_{ii}(\tau, \tau_m)$ et un facteur de phase $\Phi_{ii}(\tau, \tau_m)$. Les solutions s'écrivent :

population P_{11} :

$$\alpha_{11}(\tau, \tau_m) = [M_+(\tau)M_+(\tau_m)c_1(0) + M_+(\tau)M_+(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \quad (2.12)$$

et

$$\beta_{11}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{11}(\tau, \tau_m)} = \frac{M_+(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_+(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_+(\tau)c_2(0))} \quad (2.13)$$

population P_{22} :

$$\alpha_{22}(\tau, \tau_m) = [M_+(\tau)M_+(\tau_m)c_1(0) + M_+(\tau)M_+(\tau_m)c_2(0)] \chi(\tau)\chi(\tau_m) \quad (2.14)$$

et

$$\beta_{22}(\tau, \tau_m) e^{i\Phi_{22}(\tau, \tau_m)} = \frac{M_-(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_+(\tau)c_1(0) + M_-(\tau)c_2(0)}{(M_+(\tau)c_1(0) + M_+(\tau)c_2(0))} \quad (2.15)$$

On peut remonter, par exemple, à la probabilité de transition de Ramsey de l'état excité $P_{22}(\tau, T, \tau)$ pour deux impulsions $\Omega\tau = \pi/2$ en faisant apparaître l'expression de la phase accumulée par la cohérence au cours de l'interaction laser. Nous obtenons, en imposant les conditions initiales $c_1(0) = 1, c_2(0) = 0$, l'expression suivante :

$$P_{22}(\tau, T, \tau) = 2 \frac{\Omega^2}{\omega_{eff}^2} \sin^2(\omega_{eff}\tau/2) \left[\cos^2(\omega_{eff}\tau/2) + \frac{\delta^2}{\omega_{eff}^2} \sin^2(\omega_{eff}\tau/2) \right] \times [1 + \cos(\delta T + \Phi(\tau))] \quad (2.16)$$

avec l'expression du déphasage de Ramsey :

$$\Phi(\tau) = 2 \tan^{-1} \left[\frac{\delta}{\omega_{eff}} \tan(\omega_{eff}\tau/2) \right] \quad (2.17)$$

Notons que ces déphasages $\Phi_{ii}(\tau)$ avec l'indice $i = 1, 2$ associés aux fonctions d'ondes de chaque état atomique n'induisent un déplacement de fréquence de la frange centrale que si les niveaux d'énergies subissent une perturbation extérieure par exemple un déplacement lumineux Δ qui entraîne une correction en fréquence sur le désaccord qui devient alors $\delta \rightarrow \Delta$. Ajoutons que lorsque les phénomènes de relaxation par émission spontanée et les processus de décohérence ne peuvent plus être négligés, il faut avoir recours au formalisme de la matrice densité afin de décrire correctement les probabilités de transition en fonction du balayage en fréquence de la source d'interrogation [8].

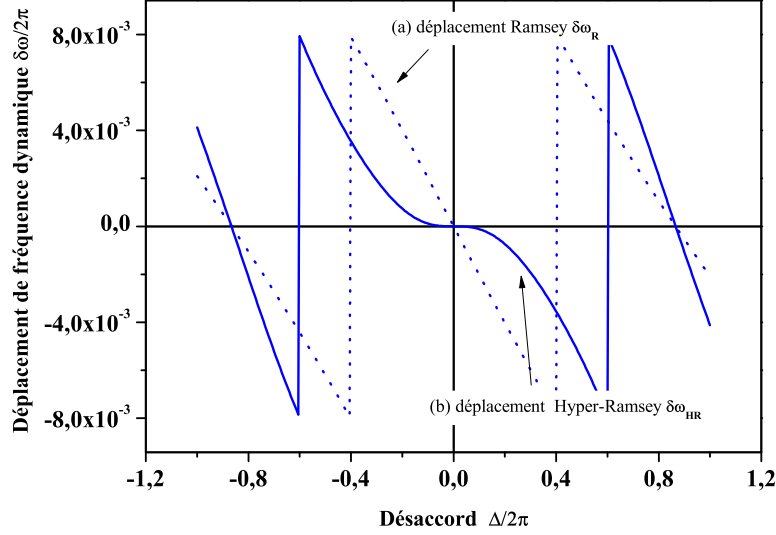


FIGURE 2.2 – Déplacements de fréquence associés à la frange centrale Ramsey $\pi/2 - T - \pi/2$ et Hyper-Ramsey $\pi/2 - T - 3\pi/2$. (a) Déplacement de fréquence $\delta\omega_R/2\pi$ avec l'équation Eq. (2.18). (b) Déplacement de fréquence $\delta\omega_{HR}/2\pi$ avec l'équation Eq. (2.19).

2.1.3 Déplacement de fréquence dynamique Ramsey et Hyper-Ramsey

La phase relative induite sur la fonction d'onde atomique ou moléculaire est pilotée par les deux interactions successives entre le système atomique, la correction de fréquence Δ et le champs électromagnétique Ω . Le déplacement de fréquence associé au déphasage de Ramsey peut être évalué à partir du modèle lorsque $T \gg \tau$. On obtient un déplacement de Ramsey $\delta\omega_R$ qui s'écrit :

$$\delta\omega_R = \frac{\Phi(\tau)}{T} = -\frac{2}{T} \tan^{-1} \left[\frac{\Delta}{\omega_{eff}} \tan(\omega_{eff}\tau/2) \right] \quad (2.18)$$

Pour deux impulsions d'aire identique $\Omega\tau = \Omega\tau_m = \pi/2$ avec un temps de libre évolution T , le déplacement de Ramsey $\delta\omega_R/2\pi$ en fonction de la perturbation extérieure en fréquence $\Delta/2\pi$ est présenté sur la figure Fig. 2.2(a). La formule donnée par l'équation Eq. 2.18 montre que pour de faibles corrections, le déplacement de fréquence varie comme $\Delta \times \tau/T$.

Le modèle précédent peut également s'appliquer lorsque la durée totale des interactions entre l'atome et le champ laser n'est plus une aire d'impulsion π . Cette méthode d'interrogation, appelée spectroscopie "Hyper-Ramsey", repose sur des durées d'impulsions différentes qui réduisent fortement la sensibilité de la mesure de la fréquence au

déplacement lumineux [13]. Afin de comprendre l'intérêt que peut présenter l'utilisation d'une telle séquence d'interrogation, on calcule la sensibilité au déplacement lumineux Δ lorsque le laser n'est pas parfaitement accordé sur la résonance atomique. On peut identifier ce déphasage Hyper-Ramsey à partir de l'équation Eq. 2.13 ou de l'équation Eq. 2.15. Le calcul complet donne un déplacement de fréquence Hyper-Ramsey $\delta\omega_{HR}$ qui s'écrit :

$$\delta\omega_{HR} = \frac{\Phi(\tau, \tau_m)}{T} = \frac{1}{T} \tan^{-1} \left[\frac{\Delta\omega_{eff} \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}(\tau + \tau_m)\right) / \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}\tau_m\right)}{\Delta^2 \sin\left(\frac{\omega_{eff}}{2}\tau\right) - \omega_{eff}^2 \cos\left(\frac{\omega_{eff}}{2}\tau\right) \cot\left(\frac{\omega_{eff}}{2}\tau_m\right)} \right] \quad (2.19)$$

Pour une impulsion d'aire $\Omega\tau = \pi/2$ suivie par un temps de libre évolution T puis une impulsion d'aire $\Omega\tau_m = 3\pi/2$, le déplacement de fréquence $\delta\omega_{HR}/2\pi$ en fonction de $\Delta/2\pi$ est présenté sur la figure Fig. 2.2(b). On remarque une forte diminution de la pente en fréquence autour du désaccord $\Delta/2\pi = 0$. La figure Fig. 2.3 montre les différentes valeurs possibles de l'aire que l'on peut appliquer sur la seconde impulsion laser pour réduire le déplacement de fréquence sachant que l'aire de la première impulsion est fixée à la valeur $\pi/2$. On remarque que la sensibilité au déplacement de fréquence Δ dépend fortement de l'aire des impulsions lasers. Il faut également donc ajouter un renversement de phase de 180° à la manière d'un écho de photon sur la fréquence de Rabi pilotant l'excitation laser pendant la deuxième impulsion pour vraiment améliorer par plusieurs ordres de grandeur

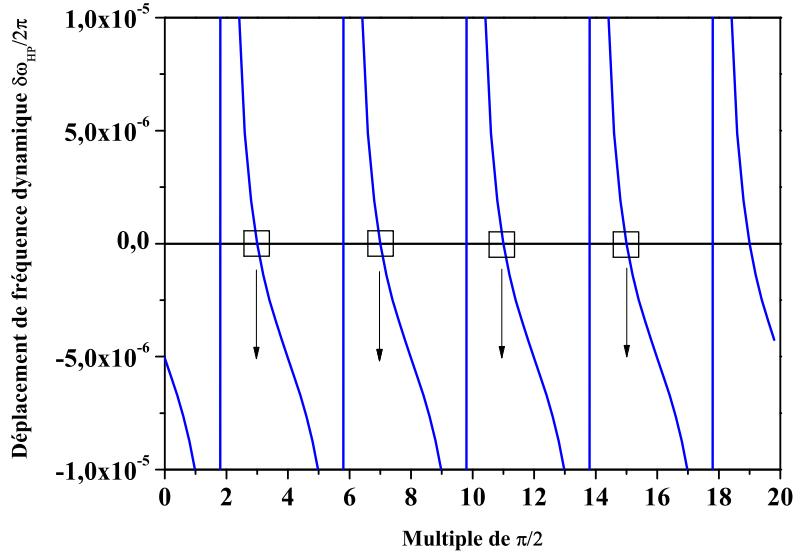


FIGURE 2.3 – Valeurs possibles de l'aire de la seconde impulsion (en multiple de $\pi/2$) pour éliminer le déplacement de fréquence $\delta\omega_{HR}/2\pi$ sachant que la première impulsion est fixée à $\pi/2$. La courbe est obtenue à partir de l'équation Eq. (2.19).

la mesure absolue de fréquence d'une transition atomique [13].

La présence de décohérence (par exemple la durée de vie des atomes dans le piège) est une limitation possible de la méthode Hyper-Ramsey car elle provoque une très légère rotation du plateau obtenu sur la figure Fig. 2.2(b) entraînant l'apparition d'une faible sensibilité aux fluctuations d'intensité du champ laser exciteur. La séquence d'interrogation Hyper-Ramsey a été imaginée au NIST en 2010. L'article initial [13] fournit un développement limité à l'ordre cubique du déplacement de fréquence Hyper Ramsey tandis que la formule Eq.2.19 est exacte. La méthode spectroscopique a été appliquée avec succès à la PTB (laboratoire de métrologie allemand Physikalisch-Technische Bundesanstalt) pour la mesure de la fréquence d'horloge octopolaire électrique $^2S_{1/2} \leftrightarrow 2F_{7/2}$ d'un ion ytterbium $^{171}\text{Yb}^+$ piégé et refroidi par laser [14]. Les résultats de l'évaluation de la mesure de la transition d'horloge ont montré une réduction par près de 4 ordres de grandeur de la sensibilité au déplacement lumineux par rapport à la méthode classique de Ramsey.

2.2 Les résonances noires

En spectroscopie laser, il est possible d'étudier des systèmes atomiques plus complexes que 2 niveaux d'énergie. Dans le cas d'une double résonance optique dans un système à 3 niveaux comme le montre la figure Fig. 2.4, des interférences quantiques entre amplitudes de diffusion se produisent car il existe plusieurs canaux d'excitation par lumière laser qui sont partagés par un même niveau excité (ou niveau relais). Cela conduit par exemple à l'apparition des résonances noires.

Les résonances noires ont été découvertes en 1976 par le groupe de Gozzini à Pise [15]. Elles étaient détectées par l'augmentation de la transmission optique ou la diminution de la fluorescence à l'aide d'un gradient de champ magnétique appliqué le long d'une cellule contenant de la vapeur de sodium éclairée par un laser multi-mode. Ils constatèrent que ces résonances noires ne se produisaient qu'aux endroits où la fréquence entre deux modes du laser était égale à l'écart hyperfin de l'état fondamental du Sodium. A la suite de cette découverte expérimentale, les résonances noires furent rapidement interprétées comme étant la signature du phénomène quantique de piégeage cohérent de population [16, 17, 18]. En fonction de la configuration d'interaction des lasers avec le système à 3 niveaux, le spectre en énergie peut prendre plusieurs profils de résonances caractéristiques. Sur la figure Fig. 2.4(a), la lumière d'un laser, appelé laser pompe et identifié par sa fréquence de Rabi Ω_1 (ou son taux d'excitation laser), est suffisamment intense pour induire une levée de dégénérescence sur la transition $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ qu'un second faisceau laser de très faible intensité et de fréquence de Rabi Ω_2 va observer. On obtient deux résonances bien séparées en fréquence que l'on appelle un doublet Autler-Townes. Sur la figure Fig. 2.4(b), lorsque les fréquences de Rabi des deux lasers sont pratiquement égales et que le taux d'excitation laser est plus petit que le taux d'émission spontanée Γ du niveau relais, on observe une résonance noire étroite dans le profil de fluorescence de l'état $|3\rangle$ [19]. Lorsque

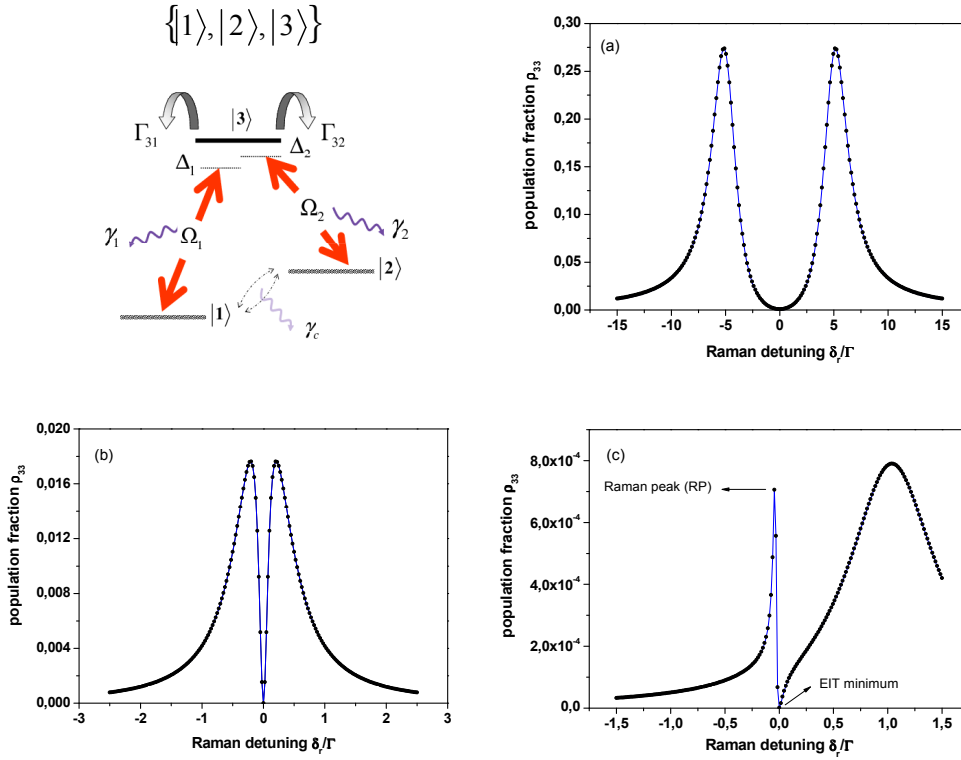


FIGURE 2.4 – Atome à 3 niveaux d'énergie excité par deux faisceaux laser en régime d'interaction continu dans la base naturelle $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$. Les taux d'émission spontanée associés à chaque transition sont notés Γ_{31}, Γ_{32} , les taux d'excitation par laser sont définis par Ω_1, Ω_2 , les relaxations des cohérences par γ_1, γ_2 et la décohérence Raman par le terme γ_c . Les désaccords en fréquence sont définis par Δ_1, Δ_2 . (a) Doublet Autler-Townes, (b) Résonance noire, (c) Résonance de Fano-Feshbach ou EIT/Raman.

la différence de fréquence entre les deux lasers est égale à l'écart de fréquence entre les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$, l'atome devient transparent à la lumière laser [20]. Lorsque les deux lasers ne sont pas résonnants avec le niveau relais, la résonance est asymétrique et le profil de raie prend l'allure d'une résonance de Fano-Feshbach [21] comme sur la figure Fig. 2.4(c). L'allure fortement dispersive du profil de raie conduit à la coexistence d'une résonance noire avec une résonance Raman plus étroite.

2.2.1 Le piégeage cohérent de population

Le phénomène de résonance noire trouve son origine dans les superpositions d'états quantiques dans un système à 3 niveaux [16]. C'est un processus de pompage optique qui réalise l'accumulation des atomes dans ces superpositions d'états sous l'effet de l'émission

spontanée (voir Fig. 2.5 (a)). Le piégeage cohérent de population ("Coherent Population Trapping" en anglais) est réalisé à l'aide de faisceaux lasers cohérents en phase et qui couplent deux transitions atomiques $|1\rangle \leftrightarrow |3\rangle$, $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ partageant un même niveau excité $|3\rangle$ comme le montre la figure Fig. 2.4. Si la différence de fréquence entre les ondes lumineuses est égale à la différence de fréquence entre les états atomiques (condition de résonance Raman), il existe une combinaison linéaire des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ non couplée à l'état excité. Un atome préparé dans cet état n'émet plus aucune lumière de fluorescence. Les atomes sont, en réalité, piégés dans deux superpositions d'états $|\Psi_{NC}\rangle, |\Psi_C\rangle$ des niveaux de plus faible énergie que l'on introduit par les expressions stationnaires suivantes :

$$\begin{cases} |\Psi_{NC}\rangle = \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}}|1\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}}|2\rangle \\ |\Psi_C\rangle = \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}}|2\rangle + \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}}|1\rangle \end{cases} \quad (2.20)$$

La superposition d'états $|\Psi_{NC}\rangle$ découplée de l'interaction avec la lumière laser est appelée un état noir. La superposition d'états $|\Psi_C\rangle$ est appelé un état couplé ou brillant. La description en terme de la cascade radiative interrompue de l'atome habillé entre ces superpositions d'états permet de rendre compte de manière élégante de la disparition de la fluorescence lorsque la condition de résonance Raman $\Delta_1 - \Delta_2 = 0$ est vérifiée [22]. Puisque l'interruption de la fluorescence, qui conduit à une résonance noire, ne se réalise que lorsque la condition de résonance Raman est vérifiée, cela offre la possibilité de verrouiller la différence de fréquence des ondes lasers sur la transition atomique entre $|1\rangle$ et $|2\rangle$ pour un fonctionnement en mode horloge [19, 23]. Dans le cadre des étalons de fréquence utilisant des alcalins comme le ^{133}Cs ou le ^{87}Rb , le piégeage cohérent de population présente l'avantage de réaliser une interrogation micro-onde par l'intermédiaire d'une différence de fréquences optiques.

2.2.2 La transparence induite électromagnétiquement

En configuration de type pompe-sonde, la présence du faisceau laser pompe de forte intensité provoque une variation importante du coefficient d'absorption du milieu atomique dans lequel se propage un faisceau sonde de plus faible intensité. La nonlinéarité induite par la présence de la cohérence hyperfine rend le milieu transparent dans une bande spectrale étroite au sein d'une raie d'absorption pour la sonde qui traverse alors la vapeur atomique sans être absorbée [24]. Ce processus proposé en 1991 par S. Harris est appelé transparence induite électromagnétiquement ("Electromagnetically Induced Transparency" en anglais) à cause de la disparition de toute absorption de photons lorsque la vapeur atomique est irradiée simultanément par les deux lasers [25]. Ce phénomène est activement étudié depuis plusieurs années car l'indice de réfraction du milieu atomique peut subir une variation brutale sous l'effet de processus multiphotoniques, ce qui permet de ralentir considérablement la vitesse de groupe de propagation de la lumière avec l'objectif de réaliser des mémoires quantiques pour le stockage de l'information [26].

2.2.3 Equations d'évolutions adiabatiques dans la base $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$

D'un point de vue plus fondamental, le système à trois niveaux atomiques irradié par deux ondes lasers peut se décrire comme un système à seulement 2 niveaux excités par un champ laser effectif [27]. Cette approche repose sur un traitement adiabatique des opérateurs d'évolution de la matrice densité sous l'effet des champs lasers et de la dissipation par émission spontanée dans la base naturelle $\{|\Psi_C\rangle, |\Psi_{NC}\rangle, |3\rangle\}$. On néglige ici le phénomène de décohérence. On note que la superposition d'états $|\Psi_C\rangle$ est toujours couplée au niveau relais $|3\rangle$ par le champ laser effectif $\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}$ comme le montre la représentation de l'atome de la figure Fig. 2.5(a). Une contamination radiative est transférée de l'état relais $|3\rangle$ sur la superposition couplée $|\Psi_C\rangle$ par l'intermédiaire des lasers de couplage. Cette contamination radiative est très similaire au couplage spin-orbite et hyperfin de l'état 3P_0 avec l'état 3P_1 et 1P_1 du strontium fermionique produit par le champ magnétique du spin du noyau sur les électrons (voir chapitre I).

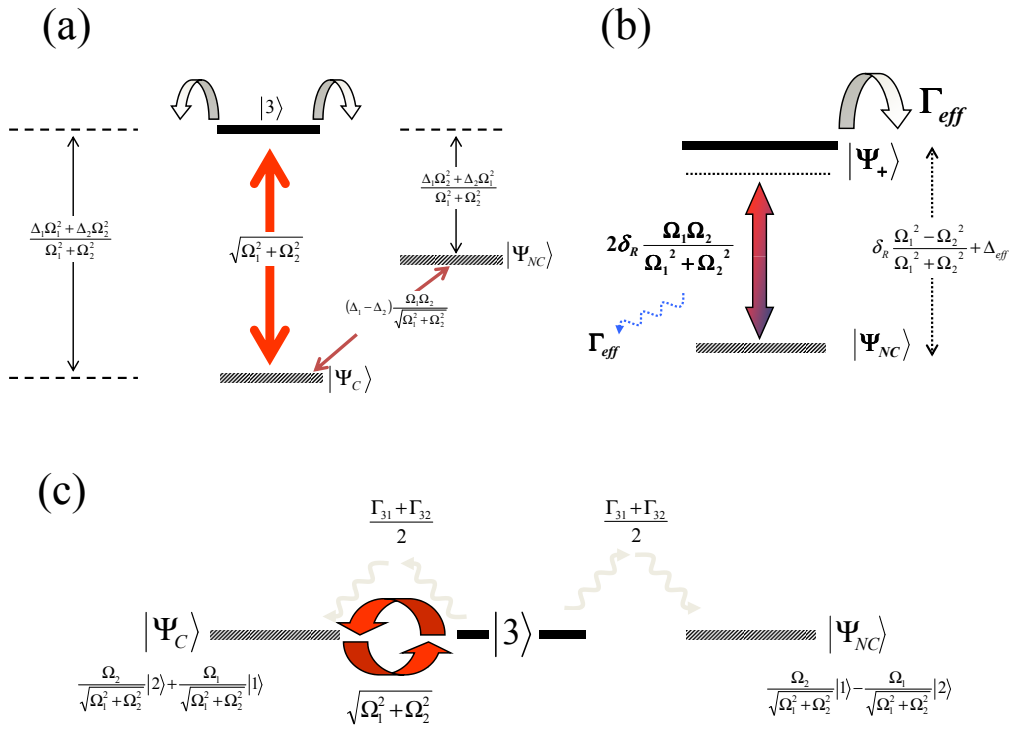


FIGURE 2.5 – (a) Atome à 3 niveaux dans la base habillée $\{|\Psi_C\rangle, |\Psi_{NC}\rangle, |3\rangle\}$ incluant les processus de relaxation. (b) Système fictif à 2 niveaux dans la base habillée $\{|\Psi_{NC}\rangle, |\Psi_+\rangle\}$. (c) Pompage optique dans l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$ lorsque la condition de résonance $\delta_r = \Delta_1 - \Delta_2 = 0$ est réalisée.

A l'aide d'une approche adiabatique, on peut alors obtenir une représentation semi-classique du hamiltonien d'interaction qui décrit un système atomique à deux états dans une nouvelle base réduite notée $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ comme le montre la figure Fig. 2.5 (b). L'état $|\Psi_C\rangle$ couplé à l'état excité par le champ laser effectif devient maintenant un état radiativement contaminé ayant absorbé une fraction de l'état excité introduit par le nouvel état $|\Psi_+\rangle \approx |\Psi_C\rangle - |3\rangle \sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} / (\Delta_0 + i\Gamma/2)$. Lorsque la condition de résonance Raman est vérifiée sur la figure Fig. 2.5 (c), on vérifie bien que la population atomique ne peut atteindre l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$ que par un processus d'émission spontanée. On considère que l'évolution de l'état relais $|3\rangle$ est rapidement asservie sur les évolutions des populations et cohérences optiques. En écrivant les nouveaux opérateurs d'évolution des composantes de la matrice densité dans la base réduite $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$, on trouve un ensemble d'équations qui décrit l'évolution temporelle des populations atomiques ρ_{NC}, ρ_+ et de la cohérence Raman $\rho_{+/NC}$ entre états atomiques [28] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\rho}_{NC} = \delta_r \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+/NC}\} + \Gamma_{eff} \left(1 - \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_+ \\ \dot{\rho}_+ = -\delta_r \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Im}\{\rho_{+/NC}\} - \Gamma_{eff} \left(1 - \Upsilon \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}\right) \rho_+ \\ \dot{\rho}_{+/NC} = -i \left(\delta_r \frac{\Omega_2^2 - \Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} - i\Gamma_{eff} \right) \rho_{+/NC} \\ \quad + i\delta_r \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} (\rho_+ - \rho_{NC}) - 2\Gamma_{eff}\Upsilon \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_+ \end{array} \right. \quad (2.21)$$

On introduit la définition du rapport de branchement $\Upsilon = \frac{\Gamma_{31} - \Gamma_{32}}{\Gamma}$ où $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$ est la relaxation totale par émission spontanée. La demi-largeur Γ_{eff} et le déplacement de fréquence Δ_{eff} s'écrivent :

$$\Gamma_{eff} = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad \Delta_{eff} = \frac{\Delta_0(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.22)$$

La conservation de la population est donnée par :

$$\rho_{NC} + \rho_+ = 1 \quad (2.23)$$

Les populations et cohérences initiales $\rho_+(0), \rho_{NC}(0), \rho_{+/NC}(0)$ s'écrivent alors en fonction de la différence de population $\Delta n(0) = \rho_{22}(0) - \rho_{11}(0)$ et de la cohérence Raman $\rho_{12}(0)$:

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_+(0) = \rho_{11}(0) \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \rho_{22}(0) \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + 2 \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Re}\{\rho_{12}(0)\} \\ \rho_{NC}(0) = \rho_{11}(0) \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \rho_{22}(0) \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - 2 \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \text{Re}\{\rho_{12}(0)\} \\ \rho_{+/NC}(0) = (\rho_{11}(0) - \rho_{22}(0)) \frac{\Omega_1\Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} - \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{12}(0) + \frac{\Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \rho_{21}(0) \end{array} \right. \quad (2.24)$$

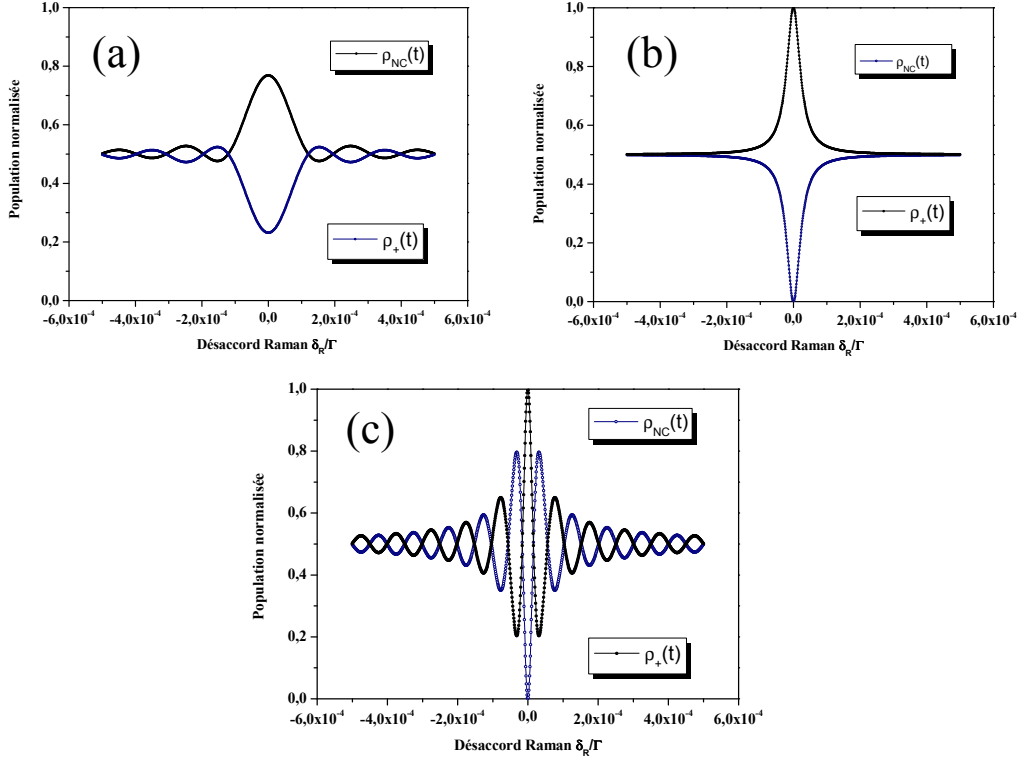


FIGURE 2.6 – Evolutions du profil de résonance noire vers l'état stationnaire dans la base $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ lorsque $\Omega_1 = \Omega_2$ (a) après une impulsion courte $\tau/\tau_p(0) \ll 1$ et après (b) une impulsion de longue durée telle que $\tau/\tau_p(0) \gg 1$. On constate une inversion complète de population entre l'état $|\Psi_+\rangle$ et l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$ lorsque la durée de la première impulsion est bien supérieure au temps de pompage $\tau_p(0)$. (c) Oscillation des populations entre états habillés lorsque on applique une impulsion de préparation $\tau \gg \tau_p(0)$ et une impulsion très courte de détection $\tau_m \mapsto 0$ séparées par un temps Ramsey T . Conditions initiales $\rho_{11}(0) = \rho_{22}(0) = 1/2$ et $\rho_{12}(0) = 0$.

Les populations atomiques $\rho_{11}, \rho_{22}, \rho_{33}$ dans la base $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$ s'écrivent en fonction des variables atomiques de la base $\{|\Psi_+\rangle, |\Psi_{NC}\rangle\}$ de la manière suivante :

$$\begin{pmatrix} \rho_{11}(t) \\ \rho_{22}(t) \\ \rho_{33}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\Omega_2^2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} & \frac{\Omega_1^2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} & -2 \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} \\ \frac{\Omega_1^2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} & \frac{\Omega_2^2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} & 2 \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\sqrt{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}} \\ \frac{\Omega_1^2 + \Omega_2^2}{\Delta_0^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \rho_+(t) \\ \rho_{NC}(t) \\ Re\{\rho_{+/NC}\}(t) \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

Le système d'équations montre qu'il s'agit d'un transfert continu de population atomique

entre superpositions d'états dont l'efficacité dépend de l'accord δ_r à résonance Raman. On peut également transposer par exemple la méthode des champs oscillants séparés de Ramsey aux résonances noires. Une première impulsion laser prépare l'état non couplé (ou état noir), et la seconde impulsion laser détecte si l'atome est encore dans cette superposition d'états après une durée T que nous appellerons le temps de vol de Ramsey [28]. Le traitement complet des équations d'évolution des observables en présence de décohérence, le calcul exact du profil stationnaire de la résonance noire ainsi que les temps caractéristiques de pompage en régime adiabatique sont effectués avec la matrice densité et présentés dans l'article **Phys. Rev. A. 84, 062502 (2011)**.

2.2.4 Solution stationnaire d'un profil de résonance noire à très faible saturation optique

Lorsque le temps d'interaction entre le champs laser et les atomes est suffisamment long, le régime devient stationnaire. Dans ce cas, il est utile de déterminer les solutions décrivant une interaction continue. Afin de déterminer les caractéristiques essentielles de la résonance noire, on se place dans un cas simple où les relaxations par émission spontanée sont égales $\Upsilon = 0$ (c'est la configuration radiative d'un alcalin par exemple). L'expression de la différence de population stationnaire $\rho_{NC}^{stat} - \rho_+^{stat}$ entre états habillés est :

$$\rho_{NC}^{stat} - \rho_+^{stat} = \frac{\Gamma_{eff}^2 + \left(\delta_r \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right)^2}{\Gamma_{eff}^2 + \left(\delta_R \frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} + \Delta_{eff} \right)^2 + 4 \left(\delta_r \frac{\Omega_1 \Omega_2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right)^2} \quad (2.26)$$

Cette différence de population vaut 1 quand le désaccord Raman $\delta_r = 0$ est satisfait. Il y a alors pompage complet des atomes dans l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$. L'expression de la fraction de population portée dans l'état relais ρ_{33}^{stat} en utilisant l'équation Eq. (2.26) et la relation de fermeture Eq. (2.23) conduit à l'expression de la fraction de population ρ_{33}^{stat} (résonance noire) en régime stationnaire :

$$\rho_{33}^{stat} = S^\Lambda \frac{\delta_r^2}{\delta_r(\delta_r - \Delta_{LS}) + \gamma_{eff}^2} \quad (2.27)$$

avec l'amplitude S^Λ de la résonance noire :

$$S^\Lambda = \frac{2 \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.28)$$

et un déplacement lumineux Δ_{LS} qui s'écrit :

$$\Delta_{LS} = (\Omega_2^2 - \Omega_1^2) \frac{\Delta_0}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4} \quad (2.29)$$

On remarque que lorsque les fréquences de Rabi sont différentes, par exemple $\Omega_1 > \Omega_2$, on trouve que l'amplitude de la résonance est proportionnelle à l'intensité du laser le plus faible. C'est le cas de la transparence induite électromagnétiquement. On définit également la demi-largeur effective de la transition comme étant :

$$\gamma_{eff} = \sqrt{\Gamma_{eff}^2 + \Delta_{eff}^2} = \frac{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)}{\sqrt{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}} \quad (2.30)$$

L'amplitude S^Λ de la résonance décroît avec l'augmentation du désaccord optique. Le déplacement de fréquence Δ_{LS} peut être associé aux déplacements lumineux des états $|1\rangle$ et $|2\rangle$ sous l'effet des couplages lasers. Il faut cependant noter que ce déplacement, qui affecte la condition de résonance Raman au dénominateur, ne joue aucun rôle sur la véritable position de la résonance noire ρ_{33}^{stat} puisque la fluorescence s'annule quand même pour $\delta_r = 0$. Cette conclusion n'est valable que si l'on néglige le taux de décohérence qui déstabilise les superpositions d'états. Lorsque l'on tient compte de la décohérence, l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$ se trouve toujours couplé à l'état $|\Psi_C\rangle$ et devient sensible au déplacement de fréquence Δ_{LS} .

2.2.5 Temps de pompage longitudinal et transverse

Puisque c'est l'émission spontanée qui porte la population atomique dans l'état noir $|\Psi_{NC}\rangle$ par pompage optique, il est nécessaire de connaître le temps caractéristique de pompage afin d'obtenir des contrastes de résonance noire suffisamment élevés. L'ensemble d'équations précédent permet d'extraire deux variables caractéristiques temporelles $\tau_p(\Delta_0)$ et $\tau_{osc}(\Delta_0)$ qui s'écrivent :

$$\begin{aligned} \tau_p(\Delta_0) &= \frac{1}{\Gamma_{eff} \left[1 - \frac{(\Omega_1^2 - \Omega_2^2)}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \Upsilon \right]} \\ \tau_{osc}(\Delta_0) &= 1/\Gamma_{eff} \end{aligned} \quad (2.31)$$

Le temps $\tau_p(\Delta_0)$ est l'analogue d'un temps de relaxation longitudinal ou de polarisation d'un spin en résonance magnétique puisqu'il représente le temps nécessaire pour porter l'intégralité des atomes dans l'état noir. Le temps $\tau_{osc}(\Delta_0)$ est le temps de relaxation des oscillations appelé aussi relaxation transverse par analogie avec la résonance magnétique. Deux régimes d'évolution des variables atomiques sont alors évidents :

- Si la durée τ de l'impulsion de préparation de l'état noir est plus courte que le temps de pompage $\tau_p(\Delta_0)$, la résonance n'a pas atteint l'amplitude maximale et présente une courbe de résonance analogue à celle de Rabi, elle présente aussi un élargissement équivalent à un temps de transit donné par l'inverse de la durée d'interaction τ . On parlera de régime dynamique avec la **spectroscopie impuls ionnelle Raman**.
- Lorsque la durée τ est plus grande que $\tau_p(\Delta_0)$, le régime stationnaire est atteint et la résonance noire présente une amplitude maximale (se reporter à la Fig. 2.6). On

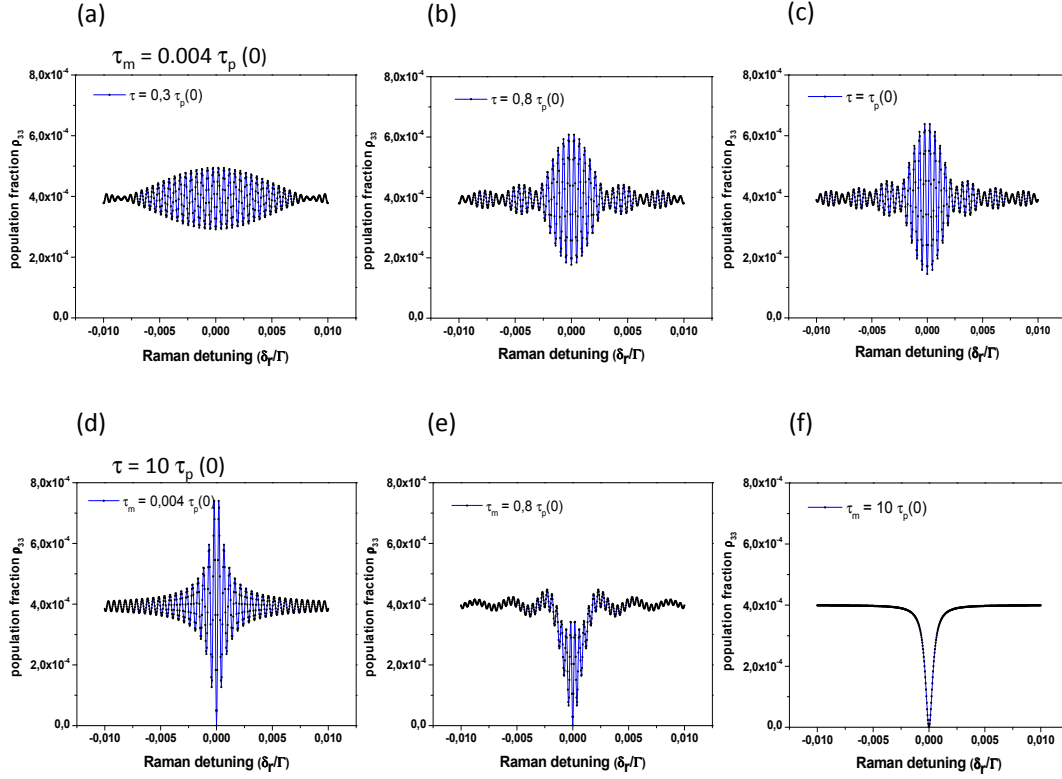


FIGURE 2.7 – Profil de résonance noire $\rho_{33}(t)$ contenant les interférences de Ramsey simulé à l'aide de l'ensemble d'équations Eq. (2.21) en fonction du temps de préparation τ pendant la première impulsion laser et du temps de détection τ_m appliqué pendant la seconde impulsion laser. On fixe arbitrairement la durée de l'impulsion de détection $\tau_m = 0.004\tau_p(0)$ en faisant varier la durée de l'impulsion de préparation τ : courbes (a) à (c). On fixe ensuite la durée de l'impulsion de préparation à $\tau = 10\tau_p(0)$ puis on fait varier la durée de l'impulsion de détection : courbes (d) à (f).

parlera dans ce cas de régime adiabatique avec la **spectroscopie impulsionnelle par résonance noire**.

En pratique, il faut avoir réalisé un cycle complet de pompage optique après environ $10 \tau_p(\Delta_0)$. Cette frontière entre ces deux régimes d'interaction n'avait jamais été clarifiée auparavant dans la vaste littérature scientifique associée aux résonances noires. L'article **Phys. Rev. A. 84, 062502 (2011)** présente une synthèse de toutes ces analyses.

2.2.6 Les franges de résonance noire

La séquence d'interrogation optimale d'une transition atomique à l'aide des résonances noires n'est pas identique à une séquence impulsionnelle de type Ramsey. La première im-

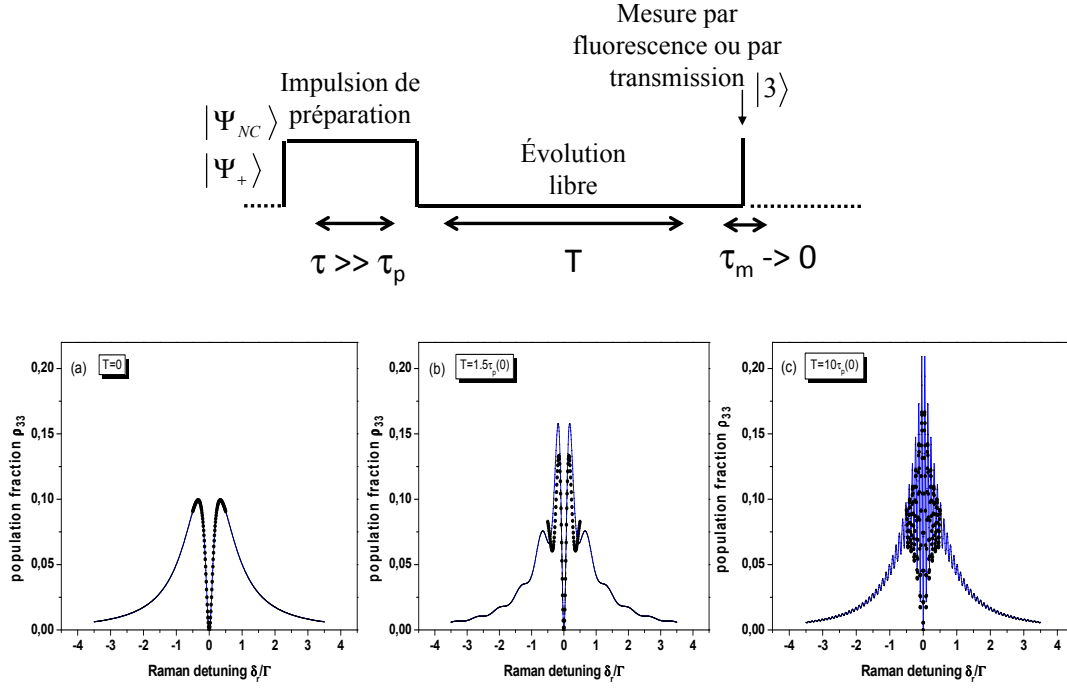


FIGURE 2.8 – Séquence d’interrogation des superpositions d’états par des impulsions laser. (a) Résonance noire obtenue après une impulsion de préparation de durée $\tau \gg \tau_p(0)$. (b)-(c) Franges de résonance noire détectées à l’aide d’une seconde impulsion de détection de durée très courte $\tau_m \mapsto 0$ après un vol libre de durée T variable. La simulation exacte (points \bullet) est réalisée à l’aide des équations Eq. (2.34) et la courbe continue est obtenue avec l’équation Eq. (2.38).

pulsion, appelée impulsion de préparation, polarise effectivement les atomes dans deux superpositions d’états possibles du système $|\Psi_+\rangle$ et $|\Psi_{NC}\rangle$. Elle joue donc un rôle équivalent à une impulsion $\pi/2$ qui induit une cohérence quantique entre états atomiques. Lorsque que l’on éteint l’interaction laser, la cohérence évolue librement à la fréquence d’horloge (ou pulsation de Bohr) définie entre les deux états $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Elle traduit l’évolution temporelle d’une interférence quantique entre $|\Psi_+\rangle$ et $|\Psi_{NC}\rangle$. La seconde impulsion de détection doit être très courte car elle ne doit pas effacer la phase accumulée par la cohérence au cours de son vol libre en provoquant un repompage des atomes dans un nouvel état noir. C’est une sorte de mesure non destructive de la polarisation atomique d’un système quantique. Si la seconde impulsion est aussi longue que la précédente, on prépare de nouvelles superpositions d’états et les oscillations cohérentes disparaissent (voir la figure Fig. 2.7). Dans le

cas de Ramsey, la cohérence ne peut être mesurée que par une projection quantique sur un des deux états atomiques. Cela se traduit par une seconde impulsion $\pi/2$ qui entraîne une oscillation cohérente entre les deux états atomiques. On représente sur la figure Fig. 2.8 la séquence optimale pour interroger les atomes par résonance noire et le résultat du profil de raie après une impulsion (Fig. 2.8 (a)) et après une seconde impulsion de mesure (Fig. 2.8 (b)-(c)) avec des durées de Ramsey variables. En spectroscopie par franges de résonance noire, le profil de raie est différent. Il résulte d'un mélange entre une enveloppe stationnaire déterminée par l'équation Eq. (2.27) et des oscillations cohérentes dont la période dépend du produit $\delta_r T$. Pour obtenir l'expression complète d'un profil de résonance noire, il est donc préférable d'avoir recours aux équations d'évolution des variables atomiques avec la matrice densité dans la base naturelle $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$. Les équations s'écrivent à partir de l'équation pilote :

$$\dot{\rho}_{ij} = \frac{1}{i\hbar} \left[\sum_k H_{i,k} \rho_{k,j} - \rho_{i,k} H_{k,j}^\dagger \right] + \mathcal{R}\rho \quad (2.32)$$

L'hamiltonien d'interaction H et la matrice de relaxation $\mathcal{R}\rho$ sont introduites par les définitions suivantes :

$$\frac{H}{\hbar} = \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \tilde{\Omega}_1 \\ 0 & \Delta_2 & \tilde{\Omega}_2 \\ \tilde{\Omega}_1 & \tilde{\Omega}_2 & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix}; \mathcal{R}\rho = \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{33} & -\gamma_c\rho_{21} & -\gamma_1\rho_{13} \\ -\gamma_c\rho_{12} & \Gamma_{32}\rho_{33} & -\gamma_2\rho_{23} \\ -\gamma_1\rho_{31} & -\gamma_2\rho_{32} & 0 \end{pmatrix} \quad (2.33)$$

La matrice \mathcal{R} contient les relaxations par émission spontanée Γ_{31}, Γ_{32} , la relaxation des cohérences optiques γ_1, γ_2 , et une décohérence Raman γ_c . Les désaccords optiques de chaque transition atomique sont notés $\Delta_1 = \Delta_0$ et $\Delta_2 = \Delta_0 - \delta_r$. Le désaccord Raman est défini par la relation $\Delta_1 - \Delta_2 = \delta_r$. En fonction des transitions atomiques utilisées pour la spectroscopie à 2 photons, les fréquences de Rabi qui pilotent l'interaction entre le système atomique et les champs laser sont définies par un couplage dipolaire électrique d_i (ou dipolaire magnétique μ_i) $\Omega_i = d_i \cdot E_i / 2\hbar$ ($\Omega_i = \mu_i \cdot B_i / 2\hbar$) avec les indices $i = 1, 2$. En utilisant Eq. (2.32), on peut écrire les équations d'évolution des variables atomiques dans l'approximation des ondes tournantes. L'ensemble des équations différentielles, dans la base naturelle $\{|1\rangle, |2\rangle, |3\rangle\}$, est alors [28] :

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{11} = -2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + \Gamma_{31}\rho_{33}, \\ \dot{\rho}_{22} = -2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} + \Gamma_{32}\rho_{33}, \\ \dot{\rho}_{33} = 2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} - \Gamma\rho_{33}, \\ \dot{\rho}_{13} = -[\gamma_1 + i\Delta_1]\rho_{13} + i\Omega_2\rho_{12} - i\Omega_1(\rho_{33} - \rho_{11}), \\ \dot{\rho}_{23} = -[\gamma_2 + i\Delta_2]\rho_{23} + i\Omega_1\rho_{21} - i\Omega_2(\rho_{33} - \rho_{22}), \\ \dot{\rho}_{12} = -[\gamma_c + i(\Delta_1 - \Delta_2)]\rho_{12} + i\Omega_2\rho_{13} - i\Omega_1\rho_{32}, \end{cases} \quad (2.34)$$

avec la conservation de la poulation définie par la relation $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1$. Cette description semi-classique est tout à fait valable lorsque l'effet Doppler est éliminé notamment pour une vapeur atomique confinée en régime Lamb-Dicke [29] à l'aide d'un gaz tampon

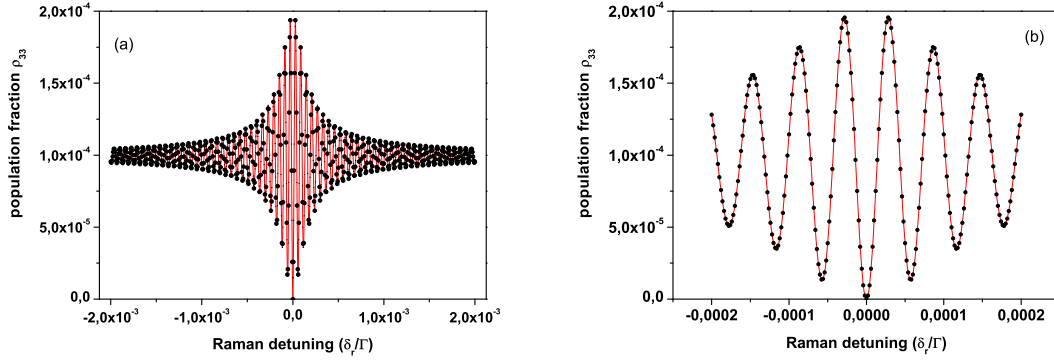


FIGURE 2.9 – *Comparison entre une simulation numérique par la matrice densité (points •) des équations Eq. (2.34) et la solution adiabatique Eq. (2.38) à faible saturation optique. (a) et (b) Signaux de franges de résonance noire. Choix des paramètres : $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\Delta_0 = 0$, $\gamma_c = 0$ and $\tau = 10\tau_p(0)$. Les fréquences de Rabi sont $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.005\Gamma$, le temps de vol libre est $T = 10\tau_p(0)$ et le temps de mesure vaut $\tau_m \sim 0.004\tau_p(0)$.*

[30] ou pour des atomes froids dans un piège dipolaire non dissipatif [31]. L'ensemble d'équations Eq. (2.34) décrit aussi l'excitation d'une transition Raman utilisée dans le cadre de l'interférométrie atomique [32] lorsque les désaccords en fréquence des lasers sont très grands devant le taux de relaxation par émission spontanée $\Delta_1, \Delta_2 \gg \Gamma$. L'évolution temporelle de l'état relais $|3\rangle$ peut être totalement éliminée de manière adiabatique car l'émission spontanée disparaît, ce qui conduit à un processus cohérent d'excitation Raman à 2 photons sur un système effectif à 2 niveaux d'énergie. On ajoute alors l'effet de recul sur les états internes de l'atome pour décrire la séparation du paquet d'ondes au cours de l'interaction avec les champs lasers [33]. Une théorie complète du piégeage cohérent de population doit contenir les degrés de liberté externes de l'atome comme l'effet Doppler et le recul induit par l'absorption du photon. Malheureusement l'émission spontanée modifie radicalement la distribution de la quantité de mouvement de l'atome. Lorsque le piégeage cohérent de population devient sélectif en vitesse ("Velocity Selective Coherent Population Trapping" en anglais), les atomes sont portés de manière aléatoire dans un état noir de classe de vitesse nulle par le recul induit sous l'effet de l'émission spontanée le long de l'axe de propagation des faisceaux lasers. La traitement quantique d'un tel processus de diffusion conduit à la compression de la quantité de mouvement et à un mécanisme de refroidissement sub-recul qui lui est associé [34].

A partir de l'analyse perturbative de l'ensemble d'équations Eq. (2.34), on obtient des expressions plus générales du taux de pompage $\tau_p(\Delta_1, \Delta_2)$ dans l'état noir et du taux de relaxation des oscillations cohérentes $\tau_{osc}(\Delta_1, \Delta_2)$. On trouve ainsi les expressions suivantes

(voir l'article **Phys. Rev. A.** **84**, **062502** (**2011**)) :

$$\begin{aligned}\tau_{osc}(\Delta_1, \Delta_2) &\sim \left(\gamma_c + \frac{\Omega_1^2}{\tilde{\gamma}_2} + \frac{\Omega_2^2}{\tilde{\gamma}_1} \right)^{-1}, \\ \tau_p(\Delta_1, \Delta_2) &\sim \left(\frac{\Omega_1^2}{\tilde{\gamma}_1} + \frac{\Omega_2^2}{\tilde{\gamma}_2} \right)^{-1} \left[1 + \tilde{\Upsilon} \frac{\Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2 - \Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1}{\Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2 + \Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1} \right]^{-1},\end{aligned}\tag{2.35}$$

avec la définition :

$$\tilde{\gamma}_i = \frac{\Delta_i^2 + \gamma_i^2}{\gamma_i}, i = 1, 2.\tag{2.36}$$

Le rapport de branchement généralisé $\tilde{\Upsilon}$ s'écrit :

$$\tilde{\Upsilon} = \frac{\frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 - \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2) + \Upsilon}{\frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 + \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2) + 1},\tag{2.37}$$

où $\Upsilon = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})$. Ces temps caractéristiques d'évolution des variables atomiques sont parfaitement consistants avec l'équation Eq. (2.31) dans la base habillée. Un calcul exact du profil d'une résonance noire peut finalement être mené en régime impulsif à partir de la matrice densité en supposant le régime stationnaire atteint à la fin de l'impulsion de préparation $\tau \gg \tau_p(\Delta_0)$ et en négligeant la durée de mesure sur la seconde impulsion $\tau_m \mapsto 0$. On obtient alors l'expression adiabatique d'un profil de franges de résonance noire observées par transmission ou par fluorescence sur l'état relais $|3\rangle$:

$$\rho_{33}(T) = \left(\frac{\frac{\Omega_2^2(\Delta n+1)}{\Gamma\tilde{\gamma}_2} - \frac{\Omega_1^2(\Delta n-1)}{\Gamma\tilde{\gamma}_1}}{1 + \frac{3}{\Gamma}(\frac{\Omega_1^2}{\tilde{\gamma}_1} + \frac{\Omega_2^2}{\tilde{\gamma}_2})} \right) \left(1 + \frac{\sqrt{\mu_{\gamma 33}^2 + \mu_{\Delta 33}^2} \times |\rho_{12}| e^{-\gamma_c T} \cos(\delta_r T - \Phi_{33})}{\frac{\Omega_2^2(\Delta n+1)}{\Gamma\tilde{\gamma}_2} - \frac{\Omega_1^2(\Delta n-1)}{\Gamma\tilde{\gamma}_1}} \right)\tag{2.38}$$

où $|\rho_{12}|$ est le module de la cohérence Raman et $\Delta n = \rho_{22} - \rho_{11}$ l'inversion de population atomique en régime stationnaire. On retrouve l'expression complète des variables $|\rho_{12}|$ et Δn dans l'article **Phys. Rev. A.** **84**, **062502** (**2011**). On note également la présence d'un déphasage atomique Φ_{33} induit par la création de la cohérence Raman qui s'écrit :

$$\Phi_{33} = \tan^{-1} \left[\frac{\mu_{\gamma 33} \operatorname{Im}\{\rho_{12}\} - \mu_{\Delta 33} \operatorname{Re}\{\rho_{12}\}}{\mu_{\gamma 33} \operatorname{Re}\{\rho_{12}\} + \mu_{\Delta 33} \operatorname{Im}\{\rho_{12}\}} \right]\tag{2.39}$$

Afin de vérifier la validité de l'expression analytique déterminée par l'équation Eq. (2.38), on compare cette forme de raie avec un calcul numérique réalisé à partir des équations d'évolution Eq. (2.34) par la matrice densité. On constate que lorsque l'on atteint le régime de saturation optique, c'est à dire que les fréquences de Rabi qui pilotent l'interaction laser deviennent du même ordre de grandeur que le taux de relaxation Γ par émission spontanée, la solution adiabatique qui néglige l'influence du temps de mesure τ_m n'est plus acceptable. Il est important de mentionner ici que la forme exacte du profil de raie d'une

résonance noire (plus généralement d'une transition à 2 photons résonnante avec un état intermédiaire) a fait l'objet de nombreux travaux théoriques en spectroscopie atomique. Lorsque le temps de vol libre devient nulle $T \rightarrow 0$, on trouve une expression de la forme de raie en parfait accord avec la solution stationnaire exacte rapportée dans l'article **Phys. Rev. A. 84, 062502 (2011)**. On peut d'ailleurs trouver, dans la littérature scientifique, différentes expressions analytiques de ce profil de raie. Nous ne citerons que quelques articles : celui de T. Hansch et P. Toschek sur la théorie du laser amplificateur à 3 niveaux [35], l'article fondateur de E. Arimondo, G. Orriols [16] sur le profil de la résonance noire, les travaux du groupe de Dehmelt sur la spectroscopie des ions piégés avec l'article de G. Janik [36] et les travaux de B. Lounis et C. Cohen-Tannoudji [21] qui montrent le lien entre la résonance noire et la résonance Raman avec les profils de Fano lorsque les deux lasers, d'intensité différente, ne sont pas résonnants avec le niveau relais.

2.2.7 Déplacement de fréquence EIT/Raman stationnaire et dynamique

Nous terminons cette description des franges de résonance noire par l'évaluation du déplacement de fréquence qui lui est associé. Comme nous l'avons remarqué, la position en fréquence de la résonance noire ne se comporte pas comme une courbe de dispersion habituelle en fonction du désaccord Δ_0 avec le niveau relais. Le déplacement lumineux Δ_{LS} habituellement donné par l'équation Eq. (2.29) est complètement modifié en présence de la cohérence Raman établie entre les états $|1\rangle$ et $|2\rangle$. Ce comportement très inhabituelle a fait l'objet d'interprétations parfois contradictoires. Je signale par exemple les travaux de R.G. Brewer, E.L. Hahn [37] sur la spectroscopie laser à 3 niveaux en régime stationnaire qui va ensuite inspirer les travaux de E. Arimondo [19]. Ces travaux mentionnent un déplacement de fréquence de la résonance noire souvent associé au déplacement lumineux des états atomiques lorsque les lasers ne sont pas à résonance avec le niveau relais. L'article de Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy, P.E. Toschek [38] nous éclaire d'avantage sur l'interprétation de la perturbation induite par les déplacements lumineux sur la position en fréquence de la résonance Raman (cas du profil de Fano-Feshbach) par une évaluation numérique comparée à des mesures expérimentales effectuées sur un ion piégé mais semble encore attribuer le déplacement en fréquence de la résonance noire à la formule Eq. (2.29).

Il est facile de déterminer le déplacement de fréquence à partir du terme de déphasage Φ_{33} accumulée par la résonance noire en régime stationnaire. On obtient lorsque $\Delta_1 \approx \Delta_2 = \Delta_0$ une expression perturbative d'un déplacement de fréquence stationnaire de la forme :

$$\delta\omega_{33}^{stat} \approx -\frac{1}{T} \tan^{-1} \left[\gamma_c \frac{\frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_2 \Delta_1 - \Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_1 \Delta_2}{\gamma_1 \gamma_2 (\Omega_2^2 \Gamma_{31} + \Omega_1^2 \Gamma_{32})}}{\gamma_c + \frac{\Omega_1^2}{\gamma_2} + \frac{\Omega_2^2}{\gamma_1}} \right], \quad (2.40)$$

On retrouve cette forme analytique dans notre article **Phys. Rev. A. 84, 062502 (2011)**. On remarque que pour une absence de décohérence Raman $\gamma_c = 0$, la frange de résonance noire n'est jamais sensible au déplacement lumineux des états atomiques qui définissent la transition d'horloge. De plus, lorsque les fréquences de Rabi sont égales $\Omega_1 = \Omega_2$, la

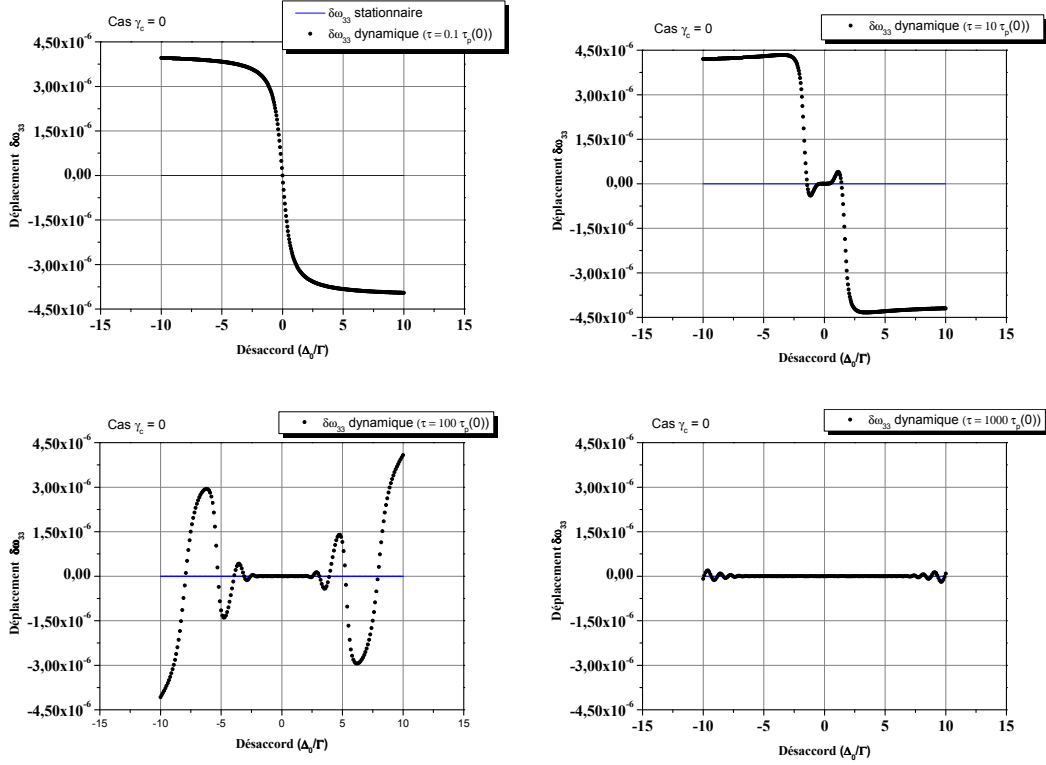


FIGURE 2.10 – *Evolution temporelle du déplacement de fréquence dynamique $\delta\omega_{33}^{dyn}$ en fonction du désaccord en fréquence Δ_0 à l'aide des équations Eq. (2.41) et Eq. (2.42) lorsque la décohérence est inexistante $\gamma_c = 0$. (a) Durée de l'impulsion $\tau = 0.1 \tau_p(0)$. (b) $\tau = 10 \tau_p(0)$. (c) $\tau = 100 \tau_p(0)$. (d) $\tau = 1000 \tau_p(0)$. La courbe continue est le résultat obtenu avec le déplacement de fréquence stationnaire en utilisant l'équation Eq. (2.40).*

fréquence d'horloge n'est pas perturbée même en présence d'un léger taux de décohérence. Toutefois, il faut signaler que ce comportement en régime stationnaire n'est atteint que pour une durée de l'impulsion de préparation infiniment longue devant le temps de pompage optique $\tau \gg \tau_p(\Delta_0)$. On peut établir, à partir des équations Eq. (2.34), un ensemble d'équations adiabatiques capables de décrire, de manière analytique, l'évolution d'un déplacement de fréquence dynamique. Il s'agit alors d'établir les solutions temporelles des parties réelle $Re\{\rho_{12}(\tau)\}$ et imaginaire $Im\{\rho_{12}(\tau)\}$ de la cohérence Raman. Ce déplacement de fréquence avait été originellement étudié par le groupe de S. Ezekiel du MIT dans les années 1980 [39] au cours du développement d'un étalon de fréquence micro-onde à jet thermique de sodium par excitation Raman stimulée [40, 41, 42, 43]. Le

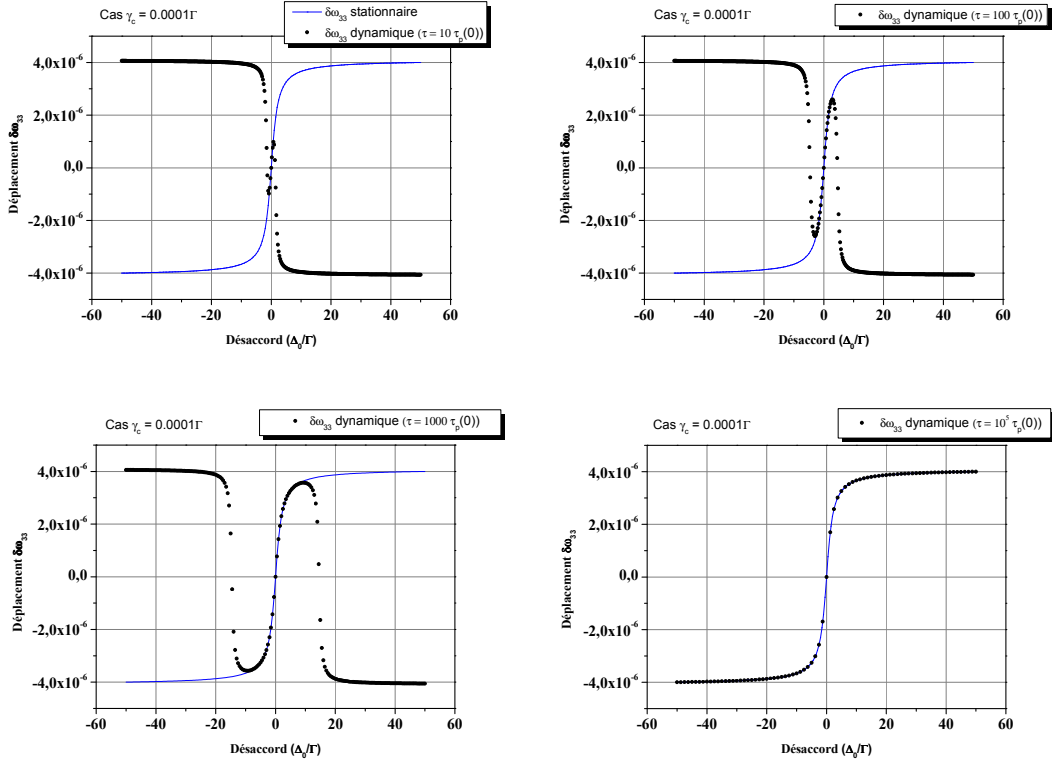


FIGURE 2.11 – Evolution temporelle du déplacement de fréquence dynamique $\delta\omega_{33}^{dyn}$ en fonction du désaccord en fréquence Δ_0 à l'aide des équations Eq. (2.41) et Eq. (2.42) lorsque la décohérence vaut $\gamma_c = 10^{-4}\Gamma$. (a) Durée de l'impulsion $\tau = 10 \tau_p(0)$. (b) $\tau = 100 \tau_p(0)$. (c) $\tau = 1000 \tau_p(0)$. (d) $\tau = 10^5 \tau_p(0)$. La courbe continue est le résultat obtenu avec le déplacement de fréquence stationnaire en utilisant l'équation Eq. (2.40).

déplacement de fréquence dynamique s'écrit maintenant :

$$\delta\omega_{33}^{dyn} \approx \frac{1}{T} \tan^{-1} \left[\frac{\mu_{\gamma 33} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\} - \mu_{\Delta 33} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\}}{\mu_{\gamma 33} \operatorname{Re}\{\rho_{12}(\tau)\} + \mu_{\Delta 33} \operatorname{Im}\{\rho_{12}(\tau)\}} \right] \quad (2.41)$$

avec les équations d'évolution de la cohérence $\rho_{12}(t)$ pilotées pendant une impulsion laser de durée τ par l'ensemble d'équations :

$$\begin{cases} \dot{\Delta}n(t) = -2(\Upsilon - 1)\Omega_1 \operatorname{Im} \left\{ \frac{\Omega_1 \left(\frac{1 - \Delta n(t)}{2} \right) + \Omega_2 \rho_{12}(t)}{\Delta_1 - \imath \gamma_1} \right\} - 2(\Upsilon + 1)\Omega_2 \operatorname{Im} \left\{ \frac{\Omega_2 \left(\frac{1 + \Delta n(t)}{2} \right) + \Omega_1 \rho_{12}^*(t)}{\Delta_2 - \imath \gamma_2} \right\} \\ \dot{\rho}_{12}(t) = -\imath(\Delta_1 - \Delta_2 - \imath \gamma_c) \rho_{12}(t) + \imath \Omega_2 \left[\frac{\Omega_1 \left(\frac{1 - \Delta n(t)}{2} \right) + \Omega_2 \rho_{12}(t)}{\Delta_1 - \imath \gamma_1} \right] - \imath \Omega_1 \left[\frac{\Omega_2 \left(\frac{1 + \Delta n(t)}{2} \right) + \Omega_1 \rho_{12}(t)}{\Delta_2 + \imath \gamma_2} \right] \end{cases} \quad (2.42)$$

L'inversion de population initiale est définie par $\Delta n(0) = \rho_{22}(0) - \rho_{11}(0) = -1$ et la cohérence Raman initiale par $\rho_{12}(0) = 0$. Les résultats de différentes simulations numériques sont rapportés dans la figure Fig. (2.10), sans décohérence $\gamma_c = 0$ et dans la Fig. (2.11), en présence de décohérence $\gamma_c = 10^{-4}\Gamma$. On constate que lorsqu'il n'y a pas de décohérence, la frange centrale ne se déplace pas quelles que soient les valeurs des fréquences de Rabi. Lorsque la décohérence ne peut pas être négligée, la frange centrale devient sensible au déplacement lumineux induit par les deux lasers sur la transition d'horloge. Il est important de noter que lorsque le désaccord en fréquence Δ_0 n'est plus nul, le temps nécessaire à la cohérence Raman pour atteindre son régime stationnaire augmente aussi. Pour une durée d'impulsion de préparation de l'ordre de $\tau \sim 10\tau_p(0)$, le déplacement de fréquence stationnaire Eq. (2.40) ne correspond au déplacement de fréquence dynamique Eq. (2.41) que pour des désaccords en fréquence Δ_0 petits devant la largeur radiative Γ du niveau intermédiaire.

2.3 Résonance atomique induite sur l'isotope bosonique ^{88}Sr

Les horloges de nouvelle génération utilisent des espèces atomiques fermioniques (^{87}Sr , ^{171}Yb , ^{199}Hg) refroidies puis piégées dans des réseaux optiques dipolaires non dissipatifs réalisés avec des lasers à forte puissance. Cela repose essentiellement sur l'existence de la longueur d'onde "magique" qui induit un déplacement de fréquence identique pour les deux états de la transition d'horloge [31]. La transition d'horloge des fermions est faiblement permise par couplage hyperfin avec les niveaux excités triplets. En revanche, pour un boson, le spin nucléaire est nul entraînant la disparition d'un couplage dipolaire électrique entre les deux états d'horloge. On ne peut donc pas en réaliser directement la spectroscopie laser. La sensibilité de la transition optique fermionique aux effets de fluctuation de polarisation du laser réalisant le piège optique peut également constituer une limite à l'exactitude relative de l'horloge au niveau relatif de 10^{-17} . L'absence de spin nucléaire élimine ce problème. Pour réaliser une horloge avec un boson, plusieurs équipes internationales de recherche ont donc proposé des schémas originaux pour interroger la transition atomique et atteindre une incertitude relative proche de 10^{-18} . Je présente les niveaux d'énergie atomique des trois espèces bosoniques possibles pour une horloge sur la Fig 2.12. Le groupe dirigé par Jun Ye au JILA à Boulder a proposé en 2005 d'utiliser sur le ^{88}Sr la méthode de la transparence induite électromagnétiquement en régime stationnaire pour observer la transition atomique bosonique à 698 nm (voir le schéma de la figure Fig 2.13(a)). Le groupe a proposé une horloge optique avec un système à 3 niveaux couplés par deux lasers entre les états $^1\text{S}_0$, $^1\text{P}_1$ et $^3\text{P}_0$. Un laser à 1354 nm assure un couplage des états atomiques entre $^3\text{P}_0$ et $^1\text{P}_1$ conduisant à une contamination radiative de l'état excité $^3\text{P}_0$ qui active artificiellement la transition d'horloge $^1\text{S}_0 \leftrightarrow ^3\text{P}_0$ du boson [45]. Le laser bleu de refroidissement à 461 nm joue le rôle d'un laser sonde qui détecte le transfert de population induit par l'excitation d'une cohérence Raman entre les états d'horloge $^1\text{S}_0$ et $^3\text{P}_0$. Le laser sur la transition de refroidissement est opérationnel depuis plusieurs années

mais le second laser nécessaire au processus de mélange radiatif implique une interaction dipolaire magnétique de type M1. Ce couplage dipolaire sur la transition $^1\text{P}_1$ - $^3\text{P}_0$ n'est pas connu expérimentalement faisant reposer l'estimation de la force de raie sur un calcul purement théorique.

L'utilisation des lasers provoque un déplacement de fréquence important de la transition atomique à cause de la présence d'autres états atomiques non résonnants avec les lasers de couplage. Le groupe du JILA estime qu'un couplage dipolaire magnétique avec une intensité inférieure au $\mu\text{W}/\text{cm}^2$ est nécessaire pour obtenir une exactitude relative inférieure à 10^{-17} en régime stationnaire. Malheureusement, une correction en fréquence tolérable aussi petite que 10 mHz sur la transition d'horloge n'est pas envisageable puisqu'il faut attendre 160 s afin d'assurer une préparation complète des superpositions entre états atomiques. Un autre groupe dirigé par N. Forston à Washington travaille sur l'ytterbium ^{174}Yb . Ce groupe propose un schéma à 4 niveaux avec des processus d'excitation à 3 photons [47]. Les trois lasers pour des transitions dipolaires électriques sont déjà

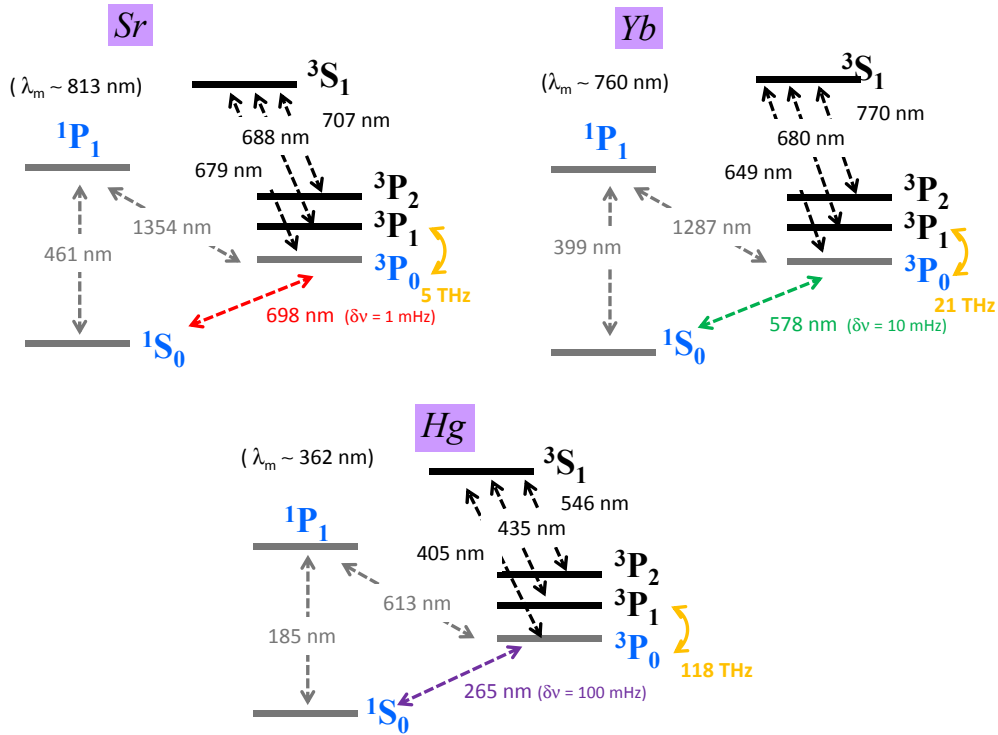


FIGURE 2.12 – Transitions optiques et longueurs d'onde magiques de quelques espèces atomiques utilisées pour des horloges optiques.

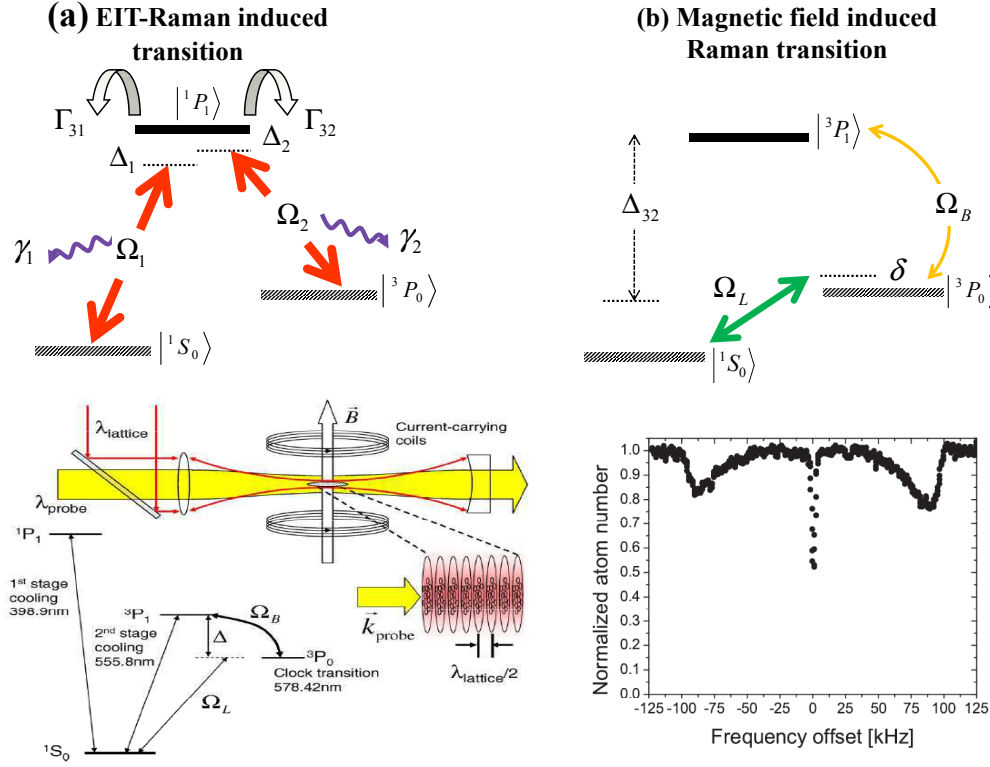


FIGURE 2.13 – Différentes méthodes spectroscopiques d’activation de la transition atomique sur un boson. (a) Transparence induite électromagnétiquement (EIT), (b) Spectroscopie induite par champ magnétique. La première observation expérimentale de la transition sur l’ytterbium ^{174}Yb dans un réseau optique avec la spectroscopie induite par champ magnétique est également présentée (voir ref [44]).

utilisés quotidiennement pour la spectroscopie du nuage d’atomes froids. Toutefois, ces lasers doivent être asservis en phase simultanément à partir d’une référence en fréquence commune à l’aide d’un peigne de fréquences optiques.

Enfin au NIST à Boulder, le groupe de C. Oates et A. Ludlow propose, toujours sur ^{174}Yb , une méthode élégante qui se fonde sur l’application d’un petit champ magnétique statique capable de mélanger les niveaux 3P_1 et 3P_0 pour induire un faible taux d’excitation entre les états d’horloge (voir le schéma de la figure Fig. 2.13(b)). Cette méthode est plus facile à mettre en oeuvre et ne demande aucun laser additionnel [44, 48]. Un champ magnétique statique de 1 mT suffit pour obtenir une largeur de raie de 1 Hz et réaliser la spectroscopie avec un laser sonde de quelques 10 mW/cm². Toutefois, le champ magnétique induit un déplacement quadratique Zeeman de la transition de plusieurs Hz et demande un contrôle assez strict sur les fluctuations magnétiques autour de 0.1 μT pour contraindre

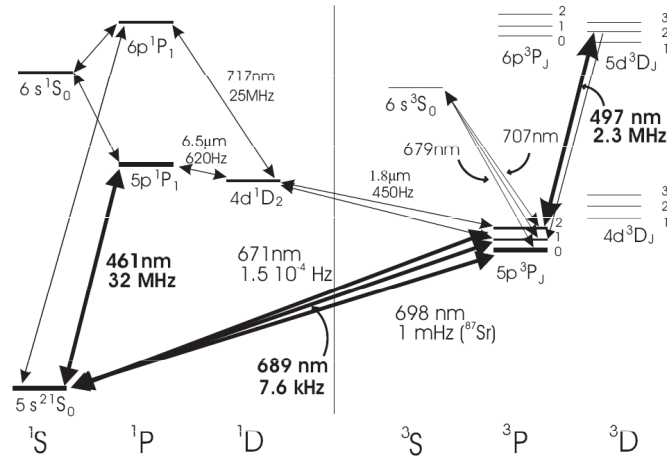


Table 1. Natural Sr isotopes (NIST data)

Isotope	Relative atomic mass	Relative abundance	Nuclear spin
⁸⁸ Sr	87.905 6143(24)	82.58(1)%	0
⁸⁶ Sr	85.909 2624(24)	9.86(1)%	0
⁸⁷ Sr	86.908 8793(24)	7.00(1)%	9/2
⁸⁴ Sr	83.913 425(4)	0.56(1)%	0

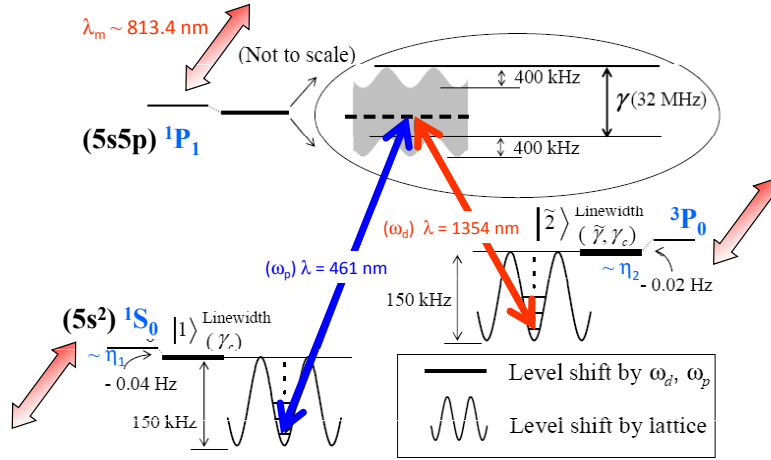


FIGURE 2.14 – Diagramme de Grotrian du strontium [46] et schéma de couplage à 3 niveaux proposé par la référence [45] pour réaliser la spectroscopie de la transition d'horloge bosonique à 430 THz dans un réseau optique à 813.4 nm. Les déplacements de fréquence associés à chaque état d'horloge sont notés η_1 (1S_0) et η_2 (3P_0).

l'incertitude sur le déplacement Zeeman à mieux que 1 mHz. Comme le taux d'excitation dépend du produit des déplacements Zeeman et lumineux, on peut relaxer la contrainte sur le champ magnétique en augmentant l'intensité du laser sonde et le déplacement lumineux associé pour garantir une exactitude relative à mieux que 10^{-17} .

Face à tous ces schémas d'interrogation possibles, la transparence induite sur l'isotope bosonique ^{88}Sr et la technique du mélange magnétique induit par un champ statique se sont naturellement imposées comme des méthodes spectroscopiques à très haute résolution pour observer une résonance atomique de très faible largeur de raie sur une espèce bosonique.

2.3.1 Configuration radiative de l'état relais 1P_1 et temps de pompage du ^{88}Sr

Les alcalino-terreux contrairement aux alcalins possèdent une configuration radiative fortement asymétrique qui permet de mesurer le transfert de population entre états d'horloge. Dans le Strontium, la transition optique dipolaire électrique de refroidissement à 461 nm a un taux d'émission spontanée $\Gamma_{461}/2\pi = 32$ MHz. La transition infrarouge dipolaire magnétique à 1354 nm possède un taux d'émission spontanée imposé par la désexcitation vers l'état intermédiaire 1D_2 soit $\Gamma_{1354}/2\pi \sim 620$ Hz (voir le diagramme de Grotrian issu de la référence [46] sur la figure Fig. 2.14). Ce rapport de branchement $\Upsilon = (\Gamma_{461} - \Gamma_{1354})/(\Gamma_{461} + \Gamma_{1354}) \approx 1$ repris de l'étude du système à 3 niveaux implique que le pompage optique des atomes dans l'état noir soit intégralement piloté par la fréquence de Rabi Ω_2 associée à la transition dipolaire magnétique à 1354 nm. Le laser pour la transition dipolaire électrique de type E1 est défini par sa fréquence (ou pulsation) de Rabi notée $\Omega_1 \equiv \Omega_{461} = \langle 3|\vec{d} \cdot \vec{E}|1\rangle/2\hbar$. L'intensité de saturation de la transition bleue est $I_{\text{sat}} = 43\text{mW}/\text{cm}^2$. Le laser pour une transition dipolaire magnétique de type M1 et de moment magnétique estimé $|m_{32}| = 0.022\mu_B$ est défini par sa fréquence de Rabi $\Omega_2 \equiv \Omega_{1354} = \langle 3|\vec{m}_{32} \cdot \vec{B}|2\rangle/2\hbar$. Dans une première approche en régime stationnaire, le groupe du JILA avait déterminé la valeur de chaque couplage laser afin de garantir une exactitude relative de l'ordre de 10^{-17} en supposant un contrôle des fluctuations d'intensité à mieux que 1 % tout en conservant la valeur de la longueur magique du piège à 813.4 nm. Les intensités requises étaient $I_{461} = 10 \mu\text{W}/\text{cm}^2$ et $I_{1354} = 4 \text{mW}/\text{cm}^2$. Malheureusement, il faut un cycle de pompage de durée 160 s avant d'atteindre un profil de résonance noire en régime stationnaire d'après le temps de pompage optique estimé avec la formule Eq. 2.31. En présence d'une décohérence $\gamma_c = 250$ mHz et afin d'atteindre des contrastes raisonnables et des temps d'interaction acceptables, l'intensité du laser de la transition dipolaire magnétique doit être au moins de l'ordre de 100 mW/cm². Cependant, comme le déplacement de fréquence de la transition d'horloge est piloté intégralement par la puissance du laser dipolaire magnétique, un décalage de la fréquence de plusieurs dizaines de Hz est attendu (voir l'article **Phys. Rev. Lett.** **97**, **233001** (**2006**)). J'ai donc développé, pour le groupe du JILA, une étude poussée sur l'influence des déplacements lumineux sur la transition d'horloge du ^{88}Sr et j'ai étudié l'effet d'une séquence EIT/Raman impulsionnelle sur la renormalisation des déplacements de fréquences induits par la présence

du laser dipolaire magnétique. Le groupe du JILA, dans le courant de l'année 2006, sous mon impulsion, décide de remplacer l'interaction continue par un schéma d'impulsions EIT/Raman séparées temporellement afin de réaliser des déphasages atomiques contrôlés capables d'éliminer le déplacement lumineux tout en réduisant le temps de pompage optique nécessaire à la préparation des états atomiques (voir l'article **Phys. Rev. Lett.** **97**, **233001** (2006)). En 2010 le groupe des horloges optiques du NIST qui cherchait une méthode susceptible de relaxer la contrainte sur le déplacement de fréquence induit par le champ magnétique statique propose la technique de la spectroscopie Hyper-Ramsey [13, 14].

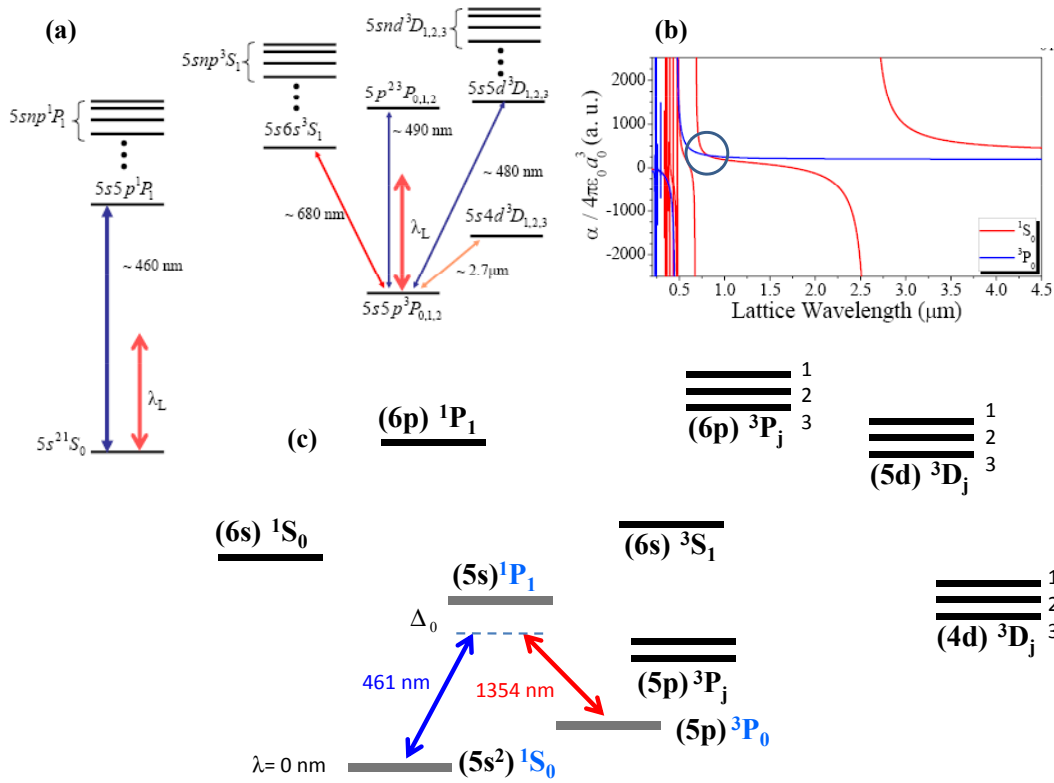


FIGURE 2.15 – (a) Déplacements lumineux à prendre en compte pour évaluer la longueur d'onde magique qui ne perturbe pas la transition d'horloge du ^{88}Sr . (b) Evaluation des polarisabilités atomiques des états $1S_0$ et $3P_0$. Le cercle indique la région spectrale dans laquelle la polarisabilité atomique est identique pour les deux états de la transition d'horloge en absence des faisceaux lasers à 461 nm et 1354 nm. (c) Le diagramme du Strontium contient également des états non résonnants lorsque l'on utilise simultanément deux lasers à 461 nm et 1354 nm pour la spectroscopie à 2 photons. Le désaccord en fréquence Δ_0 avec le niveau relais $1P_1$ est également indiqué.

	2 photons JILA	champ magnétique NIST
$\delta \rightarrow \Delta_{eff}$	$\Delta_{LS} + i(\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \frac{\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}$	Δ_{LS}
$\Omega \rightarrow \Omega_{eff}$	$2\Omega_1\Omega_2 \frac{\Delta_0 + i\Gamma/2}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}$	$2 \frac{\Omega_L\Omega_B}{\Delta_0}$
$\Delta \rightarrow \Delta_{LS}$	$\Delta_{ext} + (\Omega_1^2 - \Omega_2^2) \frac{\Delta_0}{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}$	$\Delta_{ext} + \frac{\Omega_L^2 - \Omega_B^2}{\Delta_0}$
$ 3\rangle$	$c_3 = -\frac{\Omega_1 c_1 + \Omega_2 c_2}{\Delta_0 - i\Gamma/2}$	non

TABLE 2.1 – Définitions des paramètres de la fonction d'onde complexe. La quantité $\Delta_{ext} = \eta_1 - \eta_2$ permet d'introduire de manière perturbative la contribution des niveaux non résonnants sur la valeur de la fréquence de transition d'horloge.

2.3.2 Compensation dynamique des déplacements lumineux pour une horloge atomique à ^{88}Sr

Je présente, dans ce paragraphe, un modèle de fonction d'onde atomique avec des énergies complexes ((voir l'article **Phys. Rev. Lett.** **97**, **233001** (**2006**))) incluant la présence des déplacements lumineux qui perturbent la position en fréquence de chaque état d'horloge 1S_0 et 3P_0 à cause de la contribution des niveaux atomiques non résonnants avec les lasers EIT/Raman à 461 nm et 1354 nm. Il faut souligner que le modèle de la fonction d'onde incluant des énergies complexes décrit à proprement parler un système ouvert car la norme du vecteur d'état n'est pas conservée au cours de l'évolution temporelle des variables atomiques pilotée par un l'hamiltonien d'interaction non hermitique.

Le modèle de la fonction d'onde s'applique aussi bien aux résonances noires qu'aux techniques de spectroscopie Hyper-Ramsey et de spectroscopie par champ magnétique statique. Pour cela, on généralise le traitement matriciel du paragraphe sur la probabilité de transition Hyper Ramsey en introduisant l'émission spontanée du niveau relais, le déplacements de fréquence η_1, η_2 des états d'horloge $\Delta_{ext} = \eta_1 - \eta_2$ et une nouvelle définition de la pulsation effective ω_{eff} étendue à des taux d'excitation à deux photons $\omega_{eff}^2 = \Delta_{eff}^2 + \Omega_{eff}^2$. Je définis également la fréquence de Rabi effective Ω_{eff} et le désaccord effectif Δ_{eff} à l'aide des définitions rapportées dans le tableau Tab. 2.1. Bien que ce modèle puisse décrire de manière satisfaisante les spectres observés pour des impulsions de courte durée devant le temps de pompage optique, il est nécessaire d'évaluer correctement les profils de résonance à l'aide des équations d'évolution de la matrice densité Eq. 2.34. Il est également parfaitement adapté pour la spectroscopie induite par champ magnétique comme le montre la figure Fig. 2.13)(b) car on néglige complètement les processus de relaxation sous l'effet d'un grand désaccord $\Delta_{32} \equiv \Delta_0$. Dans le cas de la spectroscopie EIT/Raman, on fixe les conditions initiales sur les amplitudes $c_1(0) = 1$ et $c_2(0) = 0$, et après une impulsion laser de durée τ , un processus Raman a transféré l'atome de l'état $|1\rangle$ vers l'état $|2\rangle$ ce qui se traduit par une amplitude de probabilité $c_2(t) \neq 0$ en passant par l'état relais $c_3(t)$ à l'instant t. On peut donc aussi évaluer le déphasage dynamique

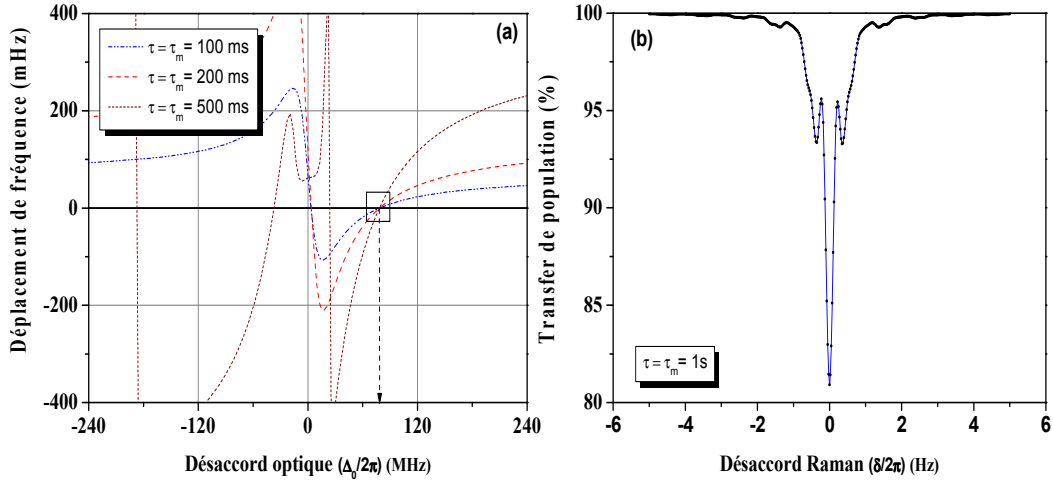


FIGURE 2.16 – (a) Déplacement de fréquence $\delta\nu_{1S_0}^{3P_0}$ calculé avec Eq. 2.43 dans le cas d'une interaction EIT/Raman en fonction du désaccord Δ_0 . Les intensités respectives associées aux lasers sont de 10 nW/cm² sur la transition à 461 nm et de 125 mW/cm² sur la transition à 1354 nm. Le temps de pompage dans l'état noir à résonance est fixé à $\tau_p = 5$ s. (b) Profil de résonance sur l'état $1S_0$ après deux impulsions EIT de durée identique $\tau = \tau_m = 1$ s et séparées par le temps de Ramsey $T=1$ s. Le profil de résonance noire (●) est calculé à partir des équations de la matrice densité Eq. 2.34 en se plaçant à la valeur du désaccord en fréquence (ici $\Delta_0/2\pi \approx 80$ MHz) obtenu par la méthode de la fonction d'onde complexe.

accumulé par l'évolution temporelle de l'amplitude de diffusion $c_3(t)$ associée à l'état relais.

Ce modèle a été également étudié en détail dans la référence [49]. Il permet, lorsque $T \geq \tau, \tau_m$, de déduire des expressions analytiques des déplacements de fréquence associés aux déphasages atomiques $\Phi_{1S_0}^{3P_0}$ et Φ_{1P_1} accumulés au cours de la séquence d'impulsions lasers sur les états d'horloge $1S_0$ et $3P_0$:

$$\delta\nu_{1S_0}^{3P_0} = \frac{1}{2\pi(T + (\tau + \tau_m)/2)} \tan^{-1} \left[\frac{M_-(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \cdot \frac{M_+(\tau)}{M_-(\tau)} \right] \quad (2.43)$$

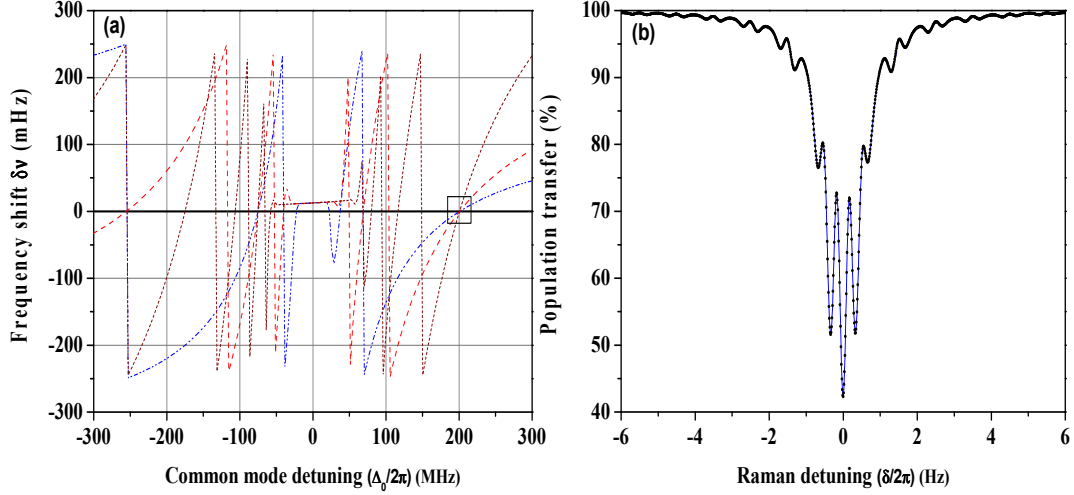


FIGURE 2.17 – (a) Déplacement de fréquence $\delta\nu_{1S_0}^{3P_0}$ calculé avec Eq. 2.43 en fonction du désaccord Δ_0 lorsque les intensités associées aux lasers sont maintenant de 100 nW/cm^2 sur la transition à 461 nm et de 500 mW/cm^2 sur la transition à 1354 nm . (b) Profil de résonance sur l'état $1S_0$. Le profil de résonance noire (●) est calculé à partir des équations de la matrice densité Eq. 2.34 en se plaçant à la valeur du désaccord en fréquence (ici $\Delta_0/2\pi \approx 200 \text{ MHz}$). Le transfert de population atteint est de 60% .

et sur l'état relais $1P_1$:

$$\delta\nu_{1P_1} = \frac{1}{2\pi (T + (\tau + \tau_m)/2)} \tan^{-1} \left[\frac{\Omega_2 M_-(\tau_m) + \Omega_1 M_+(\tau_m)}{\Omega_2 M_+(\tau_m) + \Omega_1 M_-(\tau_m)} \cdot \frac{M_+(\tau)}{M_-(\tau)} \right] \quad (2.44)$$

Comme la phase accumulée par la fonction d'onde atomique dépend du temps d'interaction, on peut obtenir un contrôle très fin de celle-ci en fonction des durées de chaque impulsion laser et en jouant sur le rapport des intensités lumineuses à 461 nm et 1354 nm . Lorsque le bon rapport entre les intensités est obtenu, les courbes de déplacement de la frange centrale de résonance noire se croisent en un point particulier qui est le désaccord en fréquence "magique" $(\Delta_0)_m$ que l'on doit appliquer par rapport au niveau relais afin de compenser le déplacement de fréquence de la résonance atomique. La méthode de calcul qui repose

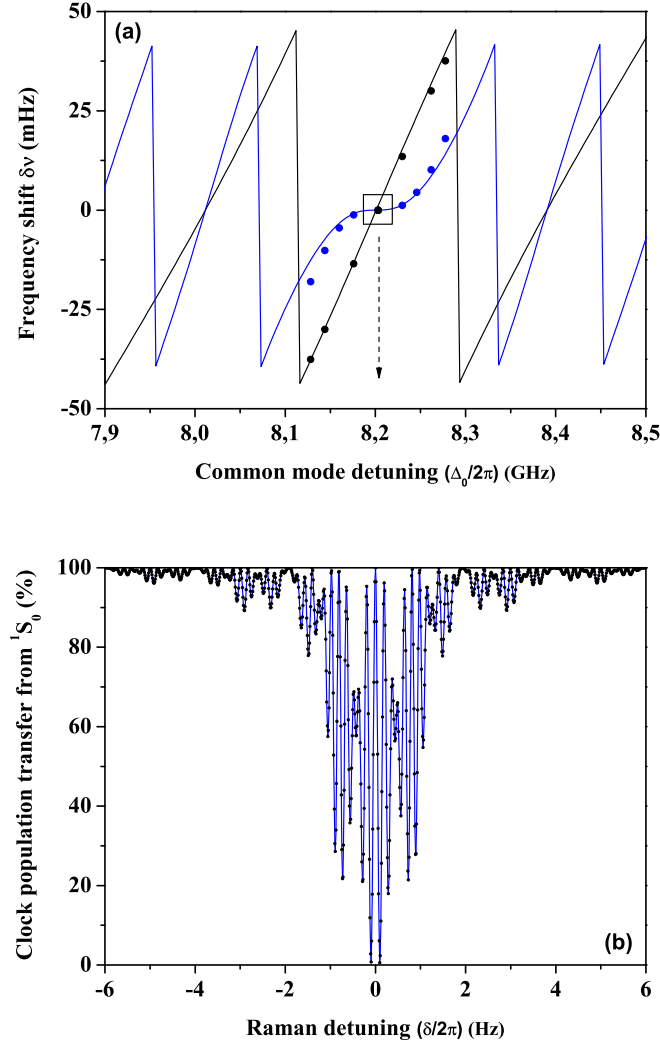


FIGURE 2.18 – (a) Déplacement de fréquence $\delta\nu_{^3P_0 \rightarrow ^1S_0}$ en fonction du désaccord Δ_0 obtenu avec Eq. 2.43 pour une séquence Raman Ramsey telle que $\tau = \tau_m = 0.5s$ et $T = 5s$ avec $\Omega_1 = \frac{15}{\sqrt{3}}\sqrt{\pi\Delta_0}$, $\Omega_2 = \frac{0.1}{\sqrt{3}}\sqrt{\pi\Delta_0}$ (courbe noire continue) et séquence Hyper-Raman Ramsey avec $\tau = 0.5s$ et $\tau_m = 1.5s$ (courbe bleue continue). Le désaccord "magique" vaut $\Delta_0/2\pi \approx 8.2$ GHz (indiqué par le rectangle). (b) Simulation numérique du profil de raie Hyper-Raman Ramsey obtenu à partir de Eq. 2.34 avec Ω_1 and Ω_2 correspondants respectivement à des intensités lasers de $\sim 5.2 \mu W/cm^2$ et de $670 mW/cm^2$. Les points \bullet proviennent d'une simulation avec les équations Eq. 2.34.

⁸⁸ Sr			
	EIT/Raman	EIT/Raman	Hyper-EIT/Raman
I_1 (mW/cm ²)	10 ⁻⁵	10 ⁻⁴	5 10 ⁻³
I_2 (W/cm ²)	0.13	0.50	0.67
$\Delta_{ext}/2\pi$ (Hz)	-4.4	-17	-24
(τ, τ_m) (s)	(1,1)	(1,1)	(0.5,1.5)
$(\Delta_0)_m/2\pi$ (GHz)	0.08	0.2	8.2
fraction atomique	(¹ S ₀) 20%	(¹ S ₀) 60%	(¹ S ₀) 100%
incertitude	< 5mHz	< 10mHz	< 1mHz

TABLE 2.2 – Paramètres atomiques (intensités lasers I_1, I_2 , désaccord en fréquence $(\Delta_0)_m/2\pi$, durées des impulsions τ, τ_m) nécessaires pour observer la transition d’horloge à 430 THz du ⁸⁸Sr corrigée du déplacement lumineux $\Delta_{ext}/2\pi$. L’incertitude sur la mesure de la fréquence est estimée à partir d’un désaccord $(\Delta_0)_m/2\pi$ contrôlé à 100 kHz en supposant négligeable les fluctuations d’intensité des lasers.

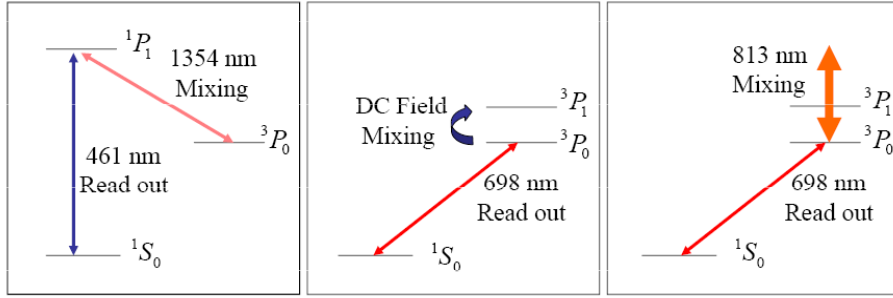
sur la matrice densité et la fonction d’onde complexe est présentée dans l’article **Phys. Rev. Lett. 97, 233001 (2006)**.

Les paramètres lasers (rapport des intensités et désaccord en fréquence avec le niveau relais) sont calculés à partir de mon modèle de fonction d’onde combiné aux équations de la matrice densité avec l’objectif d’observer un transfert de population important entre les états d’horloge ¹S₀ et ³P₀. La détection de la résonance atomique à 2 photons peut être réalisée sur l’état ¹P₁ par fluorescence ou par transmission optique. La détection des flux de population atomique est également possible car le rapport de branchement par émission spontanée est asymétrique dans les alcalino-terreux étudiés dans ce mémoire. Il suffit d’utiliser un laser qui mesure la fraction de population transférée entre les états d’horloge ¹S₀ et ³P₀ comme on le fait habituellement pour une horloge atomique [50]. En régime stationnaire, l’exactitude relative tombe rapidement à 10⁻¹⁶ pour des intensités $I_{1354} = 125$ mW/cm² et $I_{461} = 20$ nW/cm² en supposant un contrôle de l’intensité laser au %, avec un déplacement de fréquence de l’ordre de 4 Hz à 430 THz. Sur la figure Fig. 2.16(a), on a tracé le déplacement de fréquence dynamique $\delta\nu_{1S_0}^{3P_0}$ de l’horloge en fonction du désaccord en fréquence $\Delta_0/2\pi$ en MHz pour un rapport $\Omega_1/\Omega_2 \approx 15$. Pour différentes durées d’interaction $\tau = \tau_m$, on observe que les courbes de déplacement de la fréquence d’horloge se croisent vers un désaccord en fréquence proche de 80 MHz. On introduit ensuite cette valeur dans les équations Eq. 2.34. On obtient, sur la figure Fig. 2.16(b), un profil de résonance avec des oscillations en fréquence dont la période est déterminée par le temps de Ramsey ici fixé à T= 1 s. Une fraction de population de 20 % est transférée de l’état ¹S₀ vers l’état ³P₀. On peut également choisir un autre rapport $\Omega_1/\Omega_2 \approx 23.5$ tel que le désaccord en fréquence trouvé soit proche de 200 MHz comme le montre la figure Fig. 2.17(a). Le profil de résonance, correspondant à une fraction de population de 60 % transférée de l’état ¹S₀ vers l’état ³P₀, est présentée sur la figure

Fig. 2.17(b). Sur la figure Fig. 2.18(a), on a tracé le déplacement de fréquence $\delta\nu_{1S_0^3P_0}$ lorsque les intensités lasers sont élevées. Le désaccord en fréquence obtenu pour compenser la correction en fréquence sur la transition d'horloge est proche de 8.2 GHz. Il est intéressant de constater que l'allure du déplacement de fréquence de la figure Fig. 2.18(a) est très proche du déplacement calculé en spectroscopie Hyper-Ramsey (voir le paragraphe sur la probabilité de transition Hyper-Ramsey). Avec un désaccord aussi élevé, l'émission spontanée ne joue plus aucun rôle et en réalité il s'agit d'une interaction Hyper-Ramsey pilotée principalement par l'aire des impulsions lasers. Le transfert de population de la figure Fig. 2.18(b) atteint ici pratiquement 100 %.

Les calculs précédents supposent que l'on se place dans un régime d'excitation EIT/Raman relativement désaccordé en fréquence $\Delta_0 \approx \Gamma$ par rapport au niveau relais 1P_1 . C'est donc la détection des population atomiques sur les états 1S_0 et 3P_0 qui est le plus efficace pour assurer un fonctionnement en mode horloge.

Les paramètres atomiques optimaux en régime EIT/Raman ou Hyper-Ramsey sont regroupés dans le tableau Tab. 2.2 pour le strontium ^{88}Sr . Le groupe du NIST, avec A. Ludlow et C. Oates, m'a fourni très récemment les données nécessaires afin de déterminer



Spin (I)	Method($\lambda_{det.}$)	$\gamma=0.5$ Hz		$\gamma=10$ Hz	
		Fields	Shift $\delta\nu$	Fields	Shift $\delta\nu$
9/2	Spin Polarized(698)	$I_p=100\text{mW}/\text{cm}^2$	-5 μHz	$I_p=41\text{ }\mu\text{W}/\text{cm}^2$	-2 mHz
	HF1 Mixing	$B_{split}=0.3\text{G}$	-21 mHz	$B_{split}=0.3\text{G}$	-21 mHz
0	CW EIT (461)	$I_{mix}=1.9\text{ W}/\text{cm}^2$	-10.5 Hz	$I_{mix}=39\text{ W}/\text{cm}^2$	-210 Hz
0	Pulsed EIT (461)	$I_{mix}=1.9\text{ W}/\text{cm}^2$	< 5 mHz	$I_{mix}=39\text{ W}/\text{cm}^2$	< 5 mHz
0	Magnetic (698)	$I_p=52\text{mW}/\text{cm}^2$	-0.9Hz	$I_p=1\text{ W}/\text{cm}^2$	-19 Hz
	Mixing DC	$B_{mix}=2\text{G}$	-0.9 Hz	$B_{mix}=9\text{G}$	-19 Hz
0	Magic wave (698)	$I_{mix}=0.16\text{ MW}/\text{cm}^2$	-1.6 Hz	$I_{mix}=0.74\text{ MW}/\text{cm}^2$	-33 Hz
	Mixing 813 nm	$I_p=98\text{ mW}/\text{cm}^2$	-1.6 Hz	$I_p=1.8\text{ W}/\text{cm}^2$	-33 Hz

FIGURE 2.19 – Schémas des différentes techniques possibles pour réaliser la spectroscopie d'un boson en supposant une largeur γ de la résonance fixée à 0.5 Hz et 10 Hz. Tableau extrait de la référence [50].

l'effet d'une renormalisation du déplacement lumineux par spectroscopie EIT/Raman impulsionnelle sur l'ytterbium ^{174}Yb . Sur la figure Fig. 2.19, différentes méthodes de spectroscopie laser en régime continu ou impulsionnel appliquées sur le strontium ^{88}Sr sont regroupées et évaluées en terme de correction de fréquence appliquée sur la transition d'horloge en fonction de la largeur de la résonance [50].

2.3.3 Dispositif expérimental des faisceaux EIT/Raman à 430 THz

Le montage expérimental retenu pour stabiliser la différence de fréquence à 430 THz repose sur la génération d'une longueur d'onde dans le rouge à l'aide d'une différence de fréquences optiques réalisée dans un cristal de PPKTP (Phosphate de potassium titanyl périodiquement polarisé) en simple passage. Ce cristal est transparent entre 400 nm et 4000 nm et sa susceptibilité non-linéaire est suffisamment importante pour assurer un rendement de conversion efficace. Le couplage entre les ondes à 1354 nm et 461 nm est réalisé par quasi-accord de phase dans le matériau ferroélectrique. Le signe de la susceptibilité est inversé après chaque traversée d'une zone correspondante à un maximum de conversion paramétrique entre les ondes lumineuses. Cela permet d'assurer une conversion qui croît de manière quadratique sur toute la longueur du matériau. Le choix du quasi-accord de phase permet également de s'affranchir du phénomène de walk-off en garantissant la colinéarité des 3 ondes pendant leur propagation dans le cristal. La conversion paramétrique produit un signal en sortie du cristal à la longueur d'onde rouge de 698 nm. Afin d'obtenir une puissance lumineuse de quelques μW , la longueur nécessaire du cristal est au moins de 15 mm (épaisseur de 2 mm). Celui-ci est placé dans un four afin de maintenir une température autour de 40°C pour assurer le maximum conversion paramétrique. En mélangeant jusqu'à 30 mW à 1354 nm et 15 mW à 461 nm, nous avons obtenu en simple passage une puissance laser en sortie du cristal à 698 nm de 3 à 5 μW après filtrage en fréquence. On effectue ensuite un battement entre l'onde produite par conversion paramétrique et une fraction de l'onde laser issue de la diode à 698 nm stabilisée sur la cavité de référence de très haute finesse. La différence de fréquence obtenue est centrée à 400 MHz et détectée par une photodiode rapide à 1 GHz puis envoyée dans l'électronique d'asservissement du laser à 1354 nm afin de maintenir une différence de fréquence optique égale à 430 THz avec la source laser bleue stabilisée par absorption saturée à 461 nm. On donne sur la figure Fig. 2.20 le spectre du battement de fréquence enregistré sur un analyseur de spectre lorsque l'asservissement sur la cavité de pré-stabilisation du laser d'horloge à 698 nm est activé. Le spectre du battement de fréquence contient une fréquence centrale de largeur 10 Hz à -3 dB et deux résonances satellites produites par une mauvaise isolation électrique de l'alimentation à haute tension de la pompe ionique du PMO. D'après la densité spectrale de puissance intégrée, le spectre contient 80 % de la puissance laser totale utilisée. Depuis, les deux résonances satellites du spectre ont été éliminées par le groupe du JILA.

2.3.4 Conclusions et perspectives

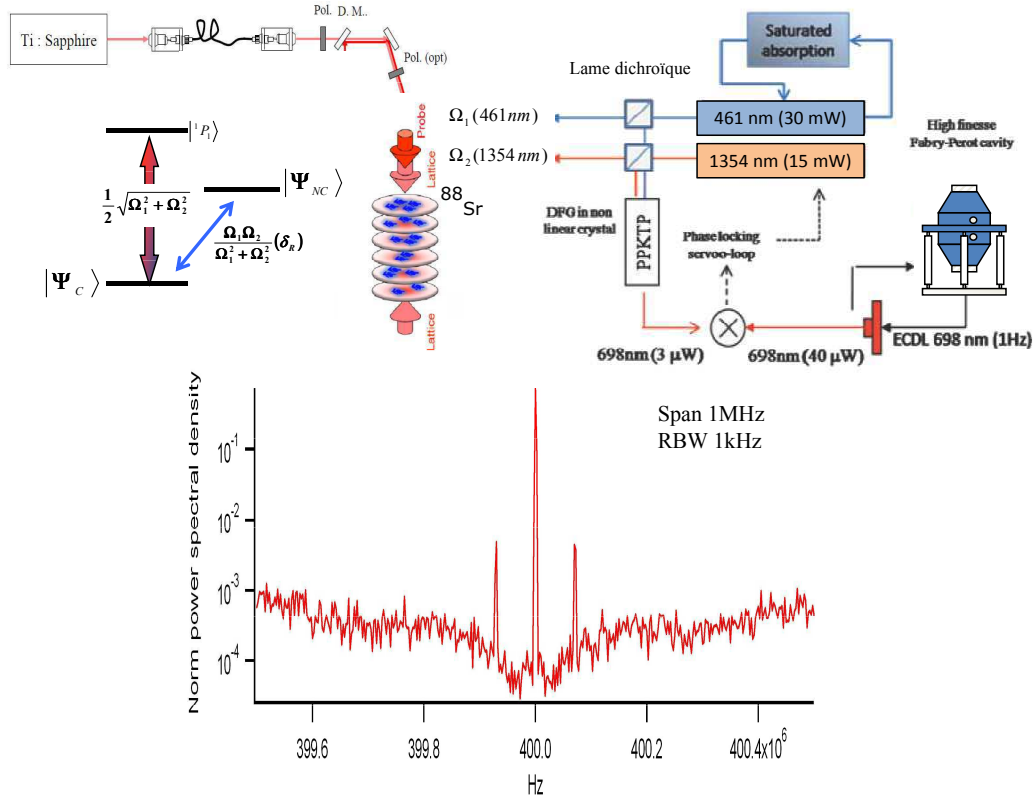


FIGURE 2.20 – Schéma du montage expérimental pour la spectroscopie par résonance noire sur le strontium ^{88}Sr avec le spectre expérimental du battement de fréquence stabilisé par la boucle d'asservissement électronique entre la différence de fréquence obtenue à travers le cristal nonlinéaire et le laser d'horloge ultra-stable à 698 nm.

Mes travaux de recherche sur les résonances noires ont permis de montrer qu'il était possible de réaliser la spectroscopie à très haute résolution, dans des structures atomiques complexes, de transitions permises et interdites. L'application simultanée des résonances noires avec la technique de spectroscopie de Ramsey permet non seulement la mesure à très haute résolution de la fréquence de transitions dipolaires magnétiques sur des alcalins comme je l'avais démontré expérimentalement au SYRTE pendant ma thèse mais aussi d'envisager désormais la spectroscopie laser à très haute résolution de transitions interdites sur des alcalino-terreux pour réaliser de nouvelles horloges optiques.

Depuis 2010 et la nouvelle proposition du groupe des horloges du NIST d'appliquer la spectroscopie induite par champ magnétique avec la méthode Hyper-Ramsey pour réduire la sensibilité de la transition d'horloge aux fluctuations d'intensité du laser ou à l'amplitude du champ magnétique statique, j'ai essayé d'élargir le travail entrepris initialement

sur les résonances noires aux transitions Raman. Le modèle de la fonction d'onde à énergies complexes a permis de mettre en évidence les avantages métrologiques de la spectroscopie Hyper-Ramsey et de la spectroscopie EIT/Raman avec la manipulation des états internes atomiques à l'aide de déphasages induits par la présence de cohérences quantiques. Le déplacement de fréquence provoqué par les déplacements lumineux sur chaque état d'horloge est renormalisé sous l'effet d'une séquence temporelle d'impulsions lasers. Une forme "d'ingénierie quantique" permet alors, par un choix judicieux des paramètres lasers, de s'affranchir de ce déplacement et même d'en réduire la sensibilité aux fluctuations résiduelles de champs électromagnétiques qui interrogent l'atome.

Plus récemment, il semble que notre article **Phys. Rev. Lett. 97, 233001 (2006)** est également inspiré des travaux menés par des équipes de recherche sur la spectroscopie vibrationnelle par transition Raman en physique des molécules froides [51, 52, 53]. Ces travaux mentionnent l'existence de "fréquences Raman magiques" qui permettent de garantir des mesures de précision de fréquences de transitions rovibrationnelles sur des molécules froides au niveau relatif de 10^{-16} afin d'étudier la stabilité temporelle de constantes fondamentales comme le rapport m_p/m_e . J'ajoute pour finir que la spectroscopie impulsionnelle par résonance noire pourrait être utile pour une meilleure caractérisation des longueurs d'onde de diffusion des atomes dans l'étude de la formation des condensats de Bose-Einstein et la photoassociation moléculaire [54, 55].

2.4 Articles associés

2.4.1 [Phys. Rev. A. 84, 062502 \(2011\)](#)

Ultrahigh-resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances: Exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime

Thomas Zanon-Willette*

*UPMC Univ. Paris 06, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, F-75005 Paris, France, and
CNRS, UMR 7092, LPMAA, 4 place Jussieu, case 76, F-75005 Paris, France*

Emeric de Clercq

LNE-SYRTE, Observatoire de Paris, CNRS, UPMC, 61 avenue de l'Observatoire, F-75014 Paris, France

Ennio Arimondo

Dipartimento di Fisica "E. Fermi," Università di Pisa, Lgo. B. Pontecorvo 3, I-56122 Pisa, Italy

(Received 10 October 2011; published 2 December 2011)

Exact and asymptotic line shape expressions are derived from the semiclassical density matrix representation describing a set of closed three-level Λ atomic or molecular states including decoherences, relaxation rates, and light shifts. An accurate analysis of the exact steady-state dark-resonance profile describing the Autler-Townes doublet, the electromagnetically induced transparency or coherent population trapping resonance, and the Fano-Feshbach line shape leads to the linewidth expression of the two-photon Raman transition and frequency shifts associated to the clock transition. From an adiabatic analysis of the dynamical optical Bloch equations in the weak field limit, a pumping time required to efficiently trap a large number of atoms into a coherent superposition of long-lived states is established. For a highly asymmetrical configuration with different decay channels, a strong two-photon resonance based on a lower states population inversion is established when the driving continuous-wave laser fields are greatly unbalanced. When time separated resonant two-photon pulses are applied in the adiabatic pulsed regime for atomic or molecular clock engineering, where the first pulse is long enough to reach a coherent steady-state preparation and the second pulse is very short to avoid repumping into a new dark state, dark-resonance fringes mixing continuous-wave line shape properties and coherent Ramsey oscillations are created. Those fringes allow interrogation schemes bypassing the power broadening effect. Frequency shifts affecting the central clock fringe computed from asymptotic profiles and related to the Raman decoherence process exhibit nonlinear shapes with the three-level observable used for quantum measurement. We point out that different observables experience different shifts on the lower-state clock transition.

DOI: [10.1103/PhysRevA.84.062502](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.062502)

PACS number(s): 32.70.Jz, 32.80.Qk, 37.10.Jk, 06.20.Jr

I. INTRODUCTION

In the 1930s, molecular-beam magnetic resonance techniques achieved very high precision allowing the observation of atomic and molecular systems essentially in total isolation [1]. The Rabi method revealed coupling interactions between internal energy states and provided plenty of information not only on atomic and molecular structure, but also on nuclear properties. In the 1950s, Ramsey realized a scheme with much higher resolution by increasing the interaction time between the atom or molecule and the oscillating field [2]. Still today, this technique provides the highest resolution in order to follow a dynamical evolution of wave functions and probe their phase accumulations. Control and elimination of systematic frequency shifts dephasing a wave function oscillation at a natural Bohr frequency are fundamental tasks to achieve precision measurement [3].

An alternative tool to probe by the Rabi or Ramsey sequences, for a dipole-forbidden transition, is to radiatively mix the atomic or molecular states. As an example, without natural state mixing from a spin-orbit interaction, a long-lived Raman coherence between a ground state and a long-lived

(as in alkali metals) or metastable (as in two-electron atoms) level, to be referred as clock states, can be established by a two-photon process via an upper excited level, thus forming a three-level Λ system. The properties of such a system are strongly determined by an optical pumping mechanism leading to a formation of a dark resonance associated with a trapping of the atomic population in a coherent superposition of states [4–10]. Since such quantum superposition states are radiatively stable, the associated Raman coherence production leads to extremely narrow dark resonances allowing high-resolution frequency measurements [11]. Such coherences were explored for single trapped ions [12,13], microwave clocks [14], microwave chips [15,16], optical lattice clocks [17], multiphoton excitations [18,19], and nuclear clocks [20]. Similar coherent superpositions are used in solid-state physics for quantum information [21], in superconducting circuits [22,23], in a single impurity ion inserted into a crystal [24], in quantum dots [25] with protection against random nuclear spin interactions [26], and in optomechanical systems [27,28]. They are also actively considered within the future challenge of realizing nuclear systems for quantum optics in the x-rays region [29,30]. Dark resonances, largely exploited in quantum optics, have been extended to the preparation of molecules in rovibrational ground states [31] and to coherent superposition of atomic or molecular states in order to measure atomic

*thomas.zanon@upmc.fr

scattering lengths and lifetimes of exotic molecular states [32–35].

Three-level narrow resonances are associated to quantum interferences produced by amplitude scattering into different channels and are strongly dependent on the configuration intensities and detunings [36,37]. Such different line shapes were associated to quantum interferences as the Autler-Townes (AT) splitting of the resonance [38], the Fano-Feshbach (FF) canonical form [39], and the dark-resonance (DR) line shape [8] known as coherent population trapping (CPT) [6,40] or electromagnetically induced transparency (EIT) [41,42].

Accurate calculation of the line shape for a quantum superposition resonance requires numerical integration of the Bloch's equations. The literature reports on efforts to establish approximate analytic equations applicable to each particular case and, in a few cases, exact but rather complex ones [5,10,43–48]. The application of Λ schemes to high accuracy atomic clocks, in microwave or optical domains, requires us to determine precisely the physical processes affecting the resonance line shape and the shifts of the clock frequency. For that purpose this work provides a careful analysis of the line shape dependence on different parameters characterizing the atomic or molecular system under investigation.

The standard clock interrogation of a three-level system involves continuous excitation of the two lower states while sweeping through the Raman resonance. For that regime, starting from the steady-state analytical solution of three-level optical Bloch equations, we derive the exact expression of the resonance line shape where the role of the relaxations and dephasing rates determining the absorption profile is expressed with a physical meaning. Our detailed discussion of key line shape parameters expands previous analysis [5,6,10,13,36,37]. We show that Autler-Townes, CPT, EIT and FF line shapes are associated to a universal two-photon resonance line shape depending on system parameters [49]. The analytical expressions for the frequency shift associated either to the FF extrema or to the EIT resonance point out dependencies not obvious in a perturbation treatment.

An alternative clock operation scheme is based on a Raman-Ramsey scheme with the application of time separated but resonant two-photon pulses, experimentally introduced in the microwave domain [50,51] and extended to rubidium cold atoms [52]. This operation was inspired by the Ezekiel's group work at MIT on a thermal beam of sodium atoms [53]. While in the standard Ramsey approach, a coherent superposition of clock states in the bare atomic or molecular basis is dynamically produced by a $\pi/2$ pulse depending on pulse duration and laser power; the coherent superposition, in the three-level two-photon approach, is created by an optical pumping process long enough to reach a steady state. This scheme overcomes the power broadening mechanism of the continuous-wave resonance allowing us to obtain high contrasted signals in a saturation regime. This idea was extended in Refs. [54–56] to the realization of EIT-Raman (and hyper-Raman) optical clocks with alkaline-earth-metal atoms. The time-separated and individually tailored laser pulses may be designed to create an atomic coherent superposition while eliminating offresonant ac Stark contributions from external levels modifying the optical clock resonance [54]. For the regime of the first laser pulse long enough to produce an

efficient coherent superposition, we present here a detailed analysis describing the dependence of the DR line shape on the system parameters.

Within the quantum clock framework, the determination of line shapes and resonance shifts in different experimental configurations remains an important issue, to be carefully investigated within the present work. An important result of the present analytical and numerical analysis for the resonance frequency shift of a three-level quantum clock is that different line shapes versus the optical detunings are obtained depending on the experimentally detected population or coherence observable.

The Λ system and the Bloch's equations for an homogeneous medium are introduced in Sec. II, where an adiabatic analysis of the time dependent equations determines the approximated time scale required to produce an efficient atomic or molecular coherent superposition. Section III establishes an exact treatment of the excited state steady-state regime and derives the key informations on the dark-resonance line shape. In Sec. IV, we derive the steady-state profile of a two-photon resonance between clock states. In Sec. V, we focus our attention on the Raman coherence line shape observed between clock states. Finally Sec. VI analyzes DR fringes produced with resonant two-photon pulses separated in time mixing steady-state properties and Ramsey oscillations. A detailed analysis of the fringe properties is derived in the adiabatic regime where the first pulse establishes a steady-state solution and the probe pulse duration vanishes. Instead only dynamical properties of these phase shifts were demonstrated in Refs. [54,55,57,58]. In the Appendix A, we rewrite line shape population solutions in terms of generalized multiphoton transition rates enhancing one- and two-photon transition rates in the three-level system. We finally derive in Appendix B a first order analytical expression of the central fringe Raman frequency shift associated to the pulsed dark-resonance line shape.

II. THREE-LEVEL OPTICAL BLOCH EQUATIONS

The Doppler-free three-level system presented in Fig. 1 is described by the density matrix ρ_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$) obeying the Liouville equation

$$\frac{d}{dt}\rho_{ij} = \frac{1}{i\hbar} \sum_k (H_{i,k}\rho_{k,j} - \rho_{i,k}H_{k,j}) + \mathcal{R}\rho_{ij}. \quad (1)$$

The coupling of the three atomic or molecular states to two coherent radiation fields, see Fig. 1, is described within the rotating wave approximation (RWA) by the following Hamiltonian:

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \Delta_2 & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & 0 \end{pmatrix}, \quad (2)$$

where Δ_1 and Δ_2 are the detunings of the two fields. Depending on the transition the Rabi frequencies Ω_1 and Ω_2 driving the system are determined by the product either between the electric dipole and the electric field amplitude or between the magnetic dipole and the magnetic field amplitude. It is worth noticing that Rabi frequencies defined here are half of the definition of Ref. [59]. The matrix $\mathcal{R}\rho_{ij}$ taking into

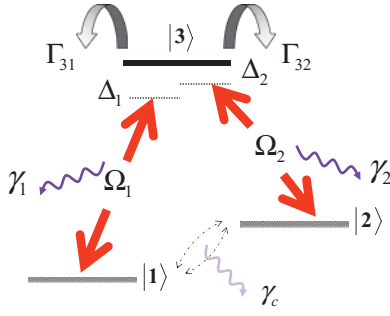


FIG. 1. (Color online) Closed three-level Λ configuration in the density matrix representation including relaxation rates Γ_{31}, Γ_{32} , and decoherences $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_c$. Optical detunings are Δ_1, Δ_2 . The parameter $\delta_r = \Delta_1 - \Delta_2$ defines the Raman resonance condition. Ω_1 and Ω_2 define the couplings with the applied laser fields. $|1\rangle$ and $|2\rangle$ are the clock states while $|3\rangle$ is the excited state.

account relaxation and decoherence phenomena is written

$$\mathcal{R}\rho_{ij} = \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{33} & -\gamma_c\rho_{12} & -\gamma_1\rho_{13} \\ -\gamma_c\rho_{21} & \Gamma_{32}\rho_{33} & -\gamma_2\rho_{23} \\ -\gamma_1\rho_{31} & -\gamma_2\rho_{32} & -\Gamma\rho_{33} \end{pmatrix}. \quad (3)$$

The total spontaneous emission rate Γ is composed by the Γ_{31}, Γ_{32} rates (with $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$) describing either an alkali ($\Gamma_{31} \approx \Gamma_{32}$) or an alkaline-earth ($\Gamma_{31} \neq \Gamma_{32}$) three-level decay configuration. Optical coherences are relaxed with terms γ_1, γ_2 , where $\gamma_1 + \gamma_2 = \gamma$. In a pure radiative process [59], optical decoherences are related to spontaneous emission rates by the relation $\gamma_1 = \gamma_2 = (\Gamma_{31} + \Gamma_{32})/2$. The ρ_{12} decoherence is described by the γ_c dephasing term. The optical Bloch equations describe the temporal evolution of the density matrix elements in the RWA as [49]

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{11}}{dt} &= -2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + \Gamma_{31}\rho_{33}, \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} &= -2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} + \Gamma_{32}\rho_{33}, \\ \frac{d\rho_{33}}{dt} &= 2\Omega_1 \text{Im}\{\rho_{13}\} + 2\Omega_2 \text{Im}\{\rho_{23}\} - \Gamma\rho_{33}, \\ \frac{d\rho_{13}}{dt} &= -[\gamma_1 + i\Delta_1]\rho_{13} + i\Omega_2\rho_{12} - i\Omega_1(\rho_{33} - \rho_{11}), \\ \frac{d\rho_{23}}{dt} &= -[\gamma_2 + i\Delta_2]\rho_{23} + i\Omega_1\rho_{21} - i\Omega_2(\rho_{33} - \rho_{22}), \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} &= -[\gamma_c + i(\Delta_1 - \Delta_2)]\rho_{12} + i\Omega_2\rho_{13} - i\Omega_1\rho_{32}, \end{aligned} \quad (4)$$

with $\rho_{ji} = \rho_{ij}^*$. The population conservation of the closed system is given by $\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1$. The optical detunings will be related to the Raman detuning δ_r by $\Delta_1 = \Delta_0$ and $\Delta_2 = \Delta_0 - \delta_r$. Δ_0 represents the common optical detuning for a configuration where one laser is fixed while the other is frequency scanned. Notice that within the approach of deriving the Δ_1, Δ_2 laser modes from a single source by modulation at frequency δ_r , with $\Delta_1 = \Delta_0 \pm \delta_r/2$ and $\Delta_2 = \Delta_0 \mp \delta_r/2$, the light-shift derivation should be modified.

Equations (4) describe the transient dynamics and the steady state of populations and quantum coherences. A complete state mixing is reached when all atoms or molecules

have been pumped efficiently into the dark state, a coherent superposition of the lower states. Thus, a pumping time is required to achieve an optimal atomic fraction trapped into the coherent state superposition. We derive such time scale evolution from Eq. (4) by an adiabatic elimination of the time derivative, $d\rho_{33}(t)/dt = d\rho_{13}(t)/dt = d\rho_{23}(t)/dt \equiv 0$ for pulse durations greater than $\Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1}$, as the population ρ_{33} and optical coherences ρ_{23} and ρ_{13} evolve more quickly than the populations ρ_{11}, ρ_{22} and the Raman coherence ρ_{12} .

We investigate the dynamics of the three-level Λ systems using various combinations of long and short two-photon pulses separated in time. A straightforward temporal analysis of the resulting adiabatic set, similar to NMR equations [60,61], exhibits two damping times: τ_{osc} , determining the phase memory of the Raman coherence precession (equivalent to a transversal or spin-spin relaxation rate), and τ_p , which determines the typical population transfer into the dark state superposition (similar to a longitudinal or spin-lattice relaxation rate) [62]. At low optical saturation $\Omega_1, \Omega_2 \ll \Gamma, \gamma$, we have

$$\tau_{\text{osc}}(\Delta_0) \sim \left(\gamma_c + \frac{\Omega_1^2}{\tilde{\gamma}_2} + \frac{\Omega_2^2}{\tilde{\gamma}_1} \right)^{-1}, \quad (5)$$

$$\tau_p(\Delta_0) \sim \left(\frac{\Omega_1^2}{\tilde{\gamma}_1} + \frac{\Omega_2^2}{\tilde{\gamma}_2} \right)^{-1} \left[1 + \tilde{\Upsilon} \frac{\Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2 - \Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1}{\Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2 + \Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1} \right]^{-1},$$

where we have introduced the following generalized relaxation rates:

$$\tilde{\gamma}_i = \frac{\Delta_i^2 + \gamma_i^2}{\gamma_i}, \quad i = 1, 2. \quad (6)$$

The $\tilde{\Upsilon}$ generalized branching ratio difference is

$$\tilde{\Upsilon} = \frac{\frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 - \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2) + \Upsilon}{\frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 + \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2) + 1}, \quad (7)$$

with the Υ normalized branching ratio given by $\Upsilon = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/(\Gamma_{31} + \Gamma_{32})$. The τ_{osc} and τ_p time scales play a key role on the population transfer between atomic or molecular states [54]. Indeed, optical coherences are efficiently generated only when the Ω_1 and Ω_2 Rabi frequencies are applied for a time τ exceeding $\Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1}$. A short pulse duration having $\Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1} < \tau < \tau_p$ will be Fourier limited and will lead to a weak contrast resonance profile, whereas a long pulse with $\tau \gg \tau_p \gg \Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1}$ will eliminate all time dependencies in line shape and frequency shifts. This regime is latter examined within the following section.

III. THE STEADY-STATE LINE SHAPE OF ρ_{33}

A. The dark resonance

In examining the steady-state situation with all time derivatives in Eq. (4) set to zero, we find the exact expression for the population of the upper state ρ_{33} ,

$$\rho_{33} = S^\Lambda \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)^2 + \gamma_c \gamma_{\text{eff}}}{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{\text{eff}}^2}, \quad (8)$$

where $\Delta_1 - \Delta_2 = \delta_r$ is the Raman detuning. The expression of Δ_f , the frequency shift affecting the Raman detuning, and Γ_{eff} , the half-width of the two-photon resonance, are reported

in the following subsection. The coherence decay rate is $\gamma_{\text{eff}} = \gamma_c + \gamma^*$ with the γ^* saturation rate of the Raman coherence given by

$$\gamma^* = \frac{\Omega_1^2}{\gamma_2} + \frac{\Omega_2^2}{\gamma_1}. \quad (9)$$

Notice that γ_{eff} coincides with τ_{osc}^{-1} for the $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ resonant laser case.

S^Λ of Eq. (8) represents the signal amplitude. It contains the broad features of the ρ_{33} dependence on the optical detunings Δ_1, Δ_2 . The fraction on Eq. (8), whose values lie in the $[0, 1]$ interval, determines the ρ_{33} narrow variation with the Raman detuning $\Delta_1 - \Delta_2$. The three-level signal amplitude S^Λ is given by

$$S^\Lambda = \frac{S}{1 + \left(3 - \frac{\Gamma}{\gamma}\right)S + \frac{\bar{\Omega}_1^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_2^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}}, \quad (10)$$

where we introduced the normalized dimensionless Rabi frequencies [63]

$$\begin{aligned} \bar{\Omega}_1^2 &= \Omega_1^2 \frac{\Gamma_{32} \gamma_1}{\Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_2 + \Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_1}, \\ \bar{\Omega}_2^2 &= \Omega_2^2 \frac{\Gamma_{31} \gamma_2}{\Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_2 + \Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_1}. \end{aligned} \quad (11)$$

The saturation parameter S driving the population exchange between energy levels is determined from Einstein's rate equations as

$$S = 2 \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{(\Gamma_{32} \gamma_2 \Omega_1^2 + \Gamma_{31} \gamma_1 \Omega_2^2)}. \quad (12)$$

The imaginary parts of optical coherences are related to the excited state line shape expression by the relation:

$$\text{Im}\{\rho_{i3}\} = \frac{\Gamma_{3i}}{2\Omega_i} \rho_{33} \quad (i = 1, 2). \quad (13)$$

Therefore their line shape is equivalent to that of ρ_{33} .

In Appendix A, we recast all population line shapes in terms of multiphoton transitions rates, pointing out the light-shift contributions to the optical detuning terms. We verified that the numerical results to be presented in the following can be derived also from that solution.

Depending on the detuning and intensity of the lasers or microwaves driving the three-level system, the line shapes associated to Eqs. (8) and (13) present very different features, known as AT spectra, the dark or EIT resonance, and the FF profile, associated to different degrees of interference between two-photon transition amplitudes.

The AT profile appears when one Rabi frequency is much larger than the natural linewidth of the excited state ($\Omega_i \gg \Gamma, i = 1, 2$), and in addition $\Omega_1 \ll \Omega_2$, or viceversa. Two split resonances, a doublet structure, appears in the frequency spectrum, as shown in Fig. 2(a).

At Rabi frequencies smaller than the excited state width, we reach the DR or EIT configuration where a narrow two-photon resonance is established from the quantum destructive interferences between the transition probability amplitudes [40,42] as seen in Fig. 2(b). The system is placed in the dark state uncoupled from the driving fields. Note that at

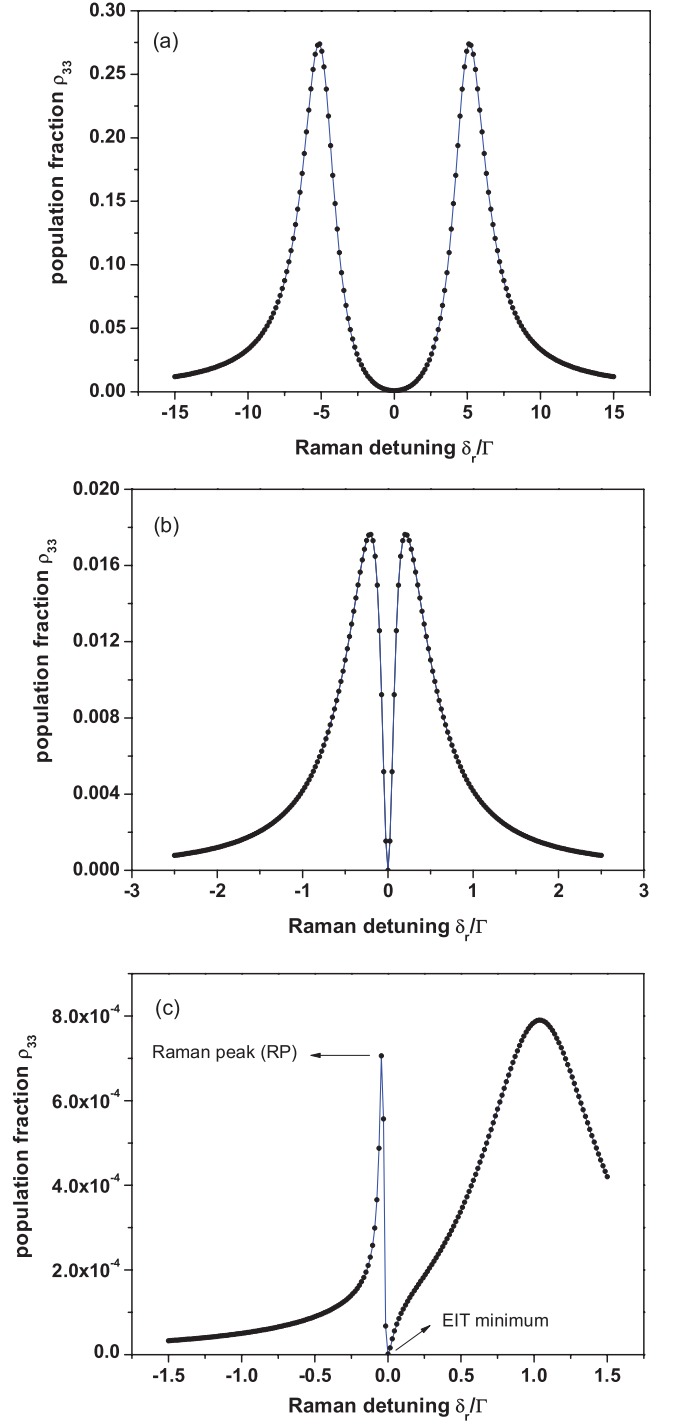


FIG. 2. (Color online) Three-level spectra vs δ_r Raman detuning observed on the ρ_{33} population. For all spectra $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\gamma_c = 0$. (a) AT spectrum at $\Delta_0 = 0$, $\Omega_1 = 5\Gamma$, and $\Omega_2 = \Gamma$. (b) Dark-EIT resonance at $\Delta_0 = 0$, $\Omega_1 = 0.2\Gamma$, and $\Omega_2 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$. (c) FF resonance for $\Delta_0 = \Gamma$, $\Omega_1 = 0.2\Gamma$, and $\Omega_2 = 10^{-2}\Gamma$. Solid lines from the analytic solution Eq. (8) and dots from the numerical integration of Eq. (4) at $\tau \gg \tau_p(0)$.

exact resonance, $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$, $\rho_{33} = 0$ when $\gamma_c = 0$. These regimes are characterized ($\Delta_1 \approx \Delta_2 \lesssim \Gamma$) with $\Omega_1 \approx \Omega_2$ for the dark resonance, and $\Omega_i \gg \Omega_j$; $\Omega_i, \Omega_j < \Gamma$ for the EIT resonance.

The FF line shape plotted in Fig. 2(c) is originated when one Rabi frequency is much larger than the second one, and in presence of an optical detuning from the excited state ($\Omega_i \gg \Omega_j, \Delta_1, \Delta_2 \geq \Gamma$). Two resonances appear in the FF spectrum, one broad corresponding to the saturated one-photon resonance. The second sharp feature exhibits a characteristics asymmetric response, highly sensitive to changes in the system parameters and centered around the $\delta_r \approx 0$ Raman detuning. Its minimum is associated to the DR, or EIT dip, while the maximum is the Raman peak, or bright resonance, associated to the preparation of the coherent superposition of $|1\rangle$ and $|2\rangle$ states coupled to the driving electromagnetic fields. Both the EIT dip and the Raman peak are manifestations of the interference between the one-photon and two-photon amplitudes [36]. The asymmetry of the FF profile is reversed by changing the relative ratio between the Rabi frequencies.

B. Γ_{eff} Raman linewidth

The subnatural EIT resonance of Fig. 2(b) experiences a linewidth which is power broadened by the optical saturation rate γ^* of Eq. (9). Let's note that such power broadening is important even for a laser intensity where the saturation is negligible on the optical transitions. In fact Ref. [64] introduced a coherence saturation intensity, defined by $\gamma^* = \gamma_c$, smaller than the optical saturation intensity. The exact expression of the Γ_{eff} Raman half-width is

$$\Gamma_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{(\gamma_{\text{eff}} + 3\gamma_c S)\gamma_{\text{eff}}}{1 + (3 - \frac{\gamma}{\gamma_c})S + \frac{\bar{\Omega}_2^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}}} \sqrt{1 + \zeta}, \quad (14)$$

where the factor ζ is

$$\zeta = \frac{\Gamma \frac{\gamma_c S}{2\gamma_1 \gamma_2} [2\Delta_1 \Delta_2 + \Delta_1^2 - \Delta_2^2] + \gamma_c^2 \frac{\bar{\Omega}_2^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}}{(\gamma_{\text{eff}} + 3\gamma_c S)\gamma_{\text{eff}}} + \frac{\frac{(\gamma_1 - \gamma_2)S}{2\gamma_1 \gamma_2} (\Gamma_{32}\gamma_2 - \Gamma_{31}\gamma_1)}{\gamma_{\text{eff}} + 3\gamma_c S}. \quad (15)$$

ζ is very small ($\zeta \ll 1$) in a quasiresonant laser interaction (according to the condition $\frac{\gamma_c}{\Gamma} \Delta_1^2, \frac{\gamma_c}{\Gamma} \Delta_2^2 \ll \Omega^2$) and a pure radiative process. As long as $\gamma_c, \Omega_1, \Omega_2 \ll \Gamma$, Γ_{eff} determines the half linewidth of the subnatural resonance. In that regime and for the pure radiative case, Γ_{eff} is well approximated by τ_{osc}^{-1} .

C. Δ_f Raman frequency shift

The frequency shift Δ_f correcting the $\delta_r = 0$ Raman detuning condition is given by

$$\Delta_f = \Delta_{\text{LS}} + \Delta_{\text{DS}}, \quad (16)$$

with the Δ_{LS} light-shift (LS) expression including the saturation effect given by

$$\Delta_{\text{LS}} = \frac{\frac{2}{\gamma_1 \gamma_2} [\Omega_2^2 \bar{\Omega}_2^2 \Delta_1 - \Omega_1^2 \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2]}{1 + (3 - \frac{\gamma}{\gamma_c})S + \frac{\bar{\Omega}_2^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}} - \frac{(\gamma_1 - \gamma_2)}{2\gamma_1 \gamma_2 \gamma} \frac{\Gamma S [\gamma_2 \Delta_1 + \gamma_1 \Delta_2]}{1 + (3 - \frac{\gamma}{\gamma_c})S + \frac{\bar{\Omega}_2^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}}. \quad (17)$$

Notice that the second term of the above expression vanishes for the symmetric Λ scheme, i.e., with $\gamma_1 = \gamma_2$ (pure radiative process). In that case, the first term of Δ_{LS} could be associated to the light-shift expression, as pointed out in [5]. The Δ_{DS} decoherence shift (DS) depends on the γ_c rate as

$$\Delta_{\text{DS}} = \gamma_c \frac{S}{2\gamma_1 \gamma_2} \frac{[\Gamma(\Delta_1 + \Delta_2) - (\Gamma_{31}\Delta_1 - \Gamma_{32}\Delta_2)]}{1 + (3 - \frac{\gamma}{\gamma_c})S + \frac{\bar{\Omega}_2^2 \Delta_1^2 + \bar{\Omega}_1^2 \Delta_2^2}{\gamma_1 \gamma_2}}. \quad (18)$$

Let us emphasize that Δ_f is always null at $\Delta_1 = \Delta_2 = 0$ resonance [65].

D. Approximated frequency shifts of EIT and FF resonances

Instead of the previous subsection exact expression correcting the Raman detuning condition in the denominator, it is useful to derive the effective shift of the dark-EIT resonance minimum, which is very relevant for precision spectroscopy or clock resonance. The calculation of the DR/EIT and FF frequency shifts requires us to examine Eq. (8) with the Raman detuning δ_r as a free parameter. A valid approximation for the EIT and Raman-peak shifts in various excitation configurations can be found when optical detuning $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$ are tuned around the Raman condition $\Delta_1 - \Delta_2 = \delta_r$. A differentiation of Eq. (8) versus the δ_r parameter leads to roots of a quadratic equation defining the following extrema $\delta\omega_{33}(\Delta_0)$ of the EIT/FF line shapes:

$$\delta\omega_{33}(\Delta_0) \approx \frac{\Gamma_{\text{eff}}^2 - \gamma_c \gamma_{\text{eff}}}{\Delta_f} \left(1 \mp \sqrt{1 + \frac{\gamma_c \gamma_{\text{eff}} \Delta_f^2}{(\Gamma_{\text{eff}}^2 - \gamma_c \gamma_{\text{eff}})^2}} \right). \quad (19)$$

The \mp solutions refer to the extrema of the FF line shape. The minus (plus) sign holds for EIT dip (Raman Peak) when $\gamma_c \gamma_{\text{eff}} / \Gamma_{\text{eff}}^2 < 1$, and the opposite when $\gamma_c \gamma_{\text{eff}} / \Gamma_{\text{eff}}^2 > 1$. Figure 3 shows the continuous-wave frequency shift versus the common optical detuning Δ_0 using Eq. (19). Results for both $\gamma_c = 5.10^{-4}\Gamma$ and $\gamma_c = 0$ are presented. The EIT decoherence shift, proportional to γ_c , exhibits a linear dependence on the optical detuning when radiative decay terms are symmetrical. As pointed in [10], when the decoherence term vanishes ($\gamma_c = 0$), there is no shift of the EIT minimum [66] except if we take into account external small offresonant level contributions [67]. The Raman peak shift produced by light and decoherence varies with the inverse of the optical detuning as discussed by [37] and observed experimentally in [12]. For a quasiresonant interaction, we can further simplify the above expression for the Raman Peak and the EIT dip when $\gamma_c \gamma_{\text{eff}} / \Gamma_{\text{eff}}^2 \ll 1$ and $\Delta_f^2 / \Gamma_{\text{eff}}^2 \ll 1$. Near the two-photon resonance, the shifts of Eq. (19) can be accurately approximated as

$$\delta\omega_{33}^{\text{EIT}}(\Delta_0) \approx -\gamma_c \Delta_f \frac{\gamma_{\text{eff}}}{2\Gamma_{\text{eff}}^2}, \quad \delta\omega_{33}^{\text{RP}}(\Delta_0) \approx 2 \frac{\Gamma_{\text{eff}}^2}{\Delta_f}. \quad (20)$$

The EIT dip frequency shift is thus roughly given by the product of the γ_c decoherence rate and the Δ_f Raman frequency shift divided by the Γ_{eff} linewidth of the subnatural resonance. Such a dependence was pointed out by [17] and by [46] based on a theoretical analysis of [68], and as mentioned in [48], was earlier derived in [69].

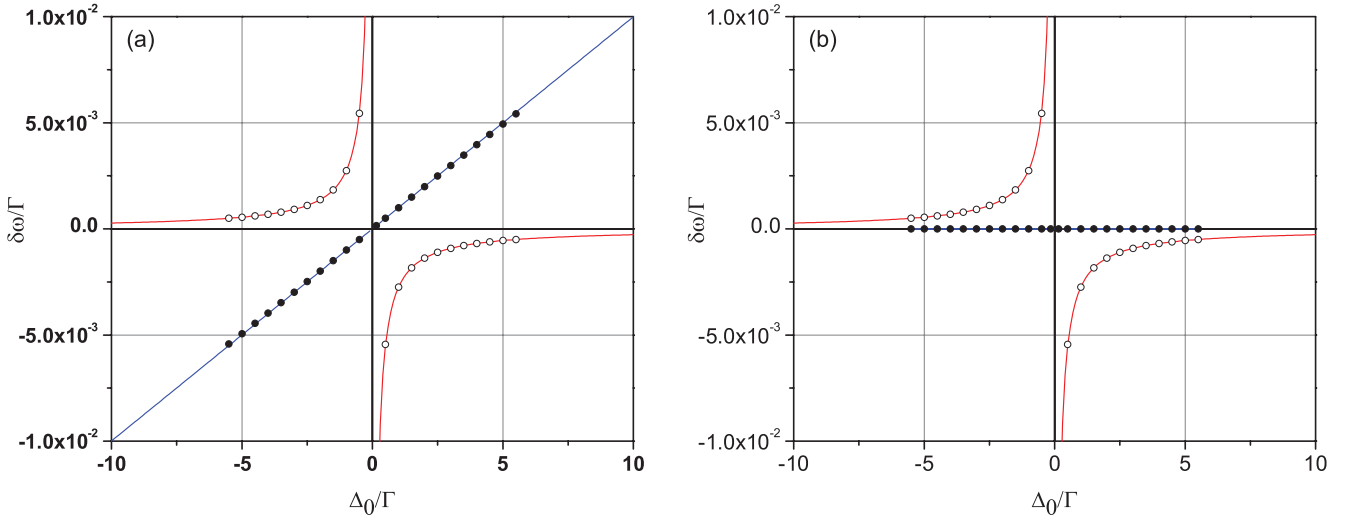


FIG. 3. (Color online) Frequency shifts of the dark-EIT dip and the Raman peak observed on the ρ_{33} excited state population vs the optical detuning Δ_0 from Eq. (19) (straight solid blue line and red lines, respectively) and from the numerical integration of Eq. (4) (solid dots \bullet and open dots \circ , respectively). Parameters are $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, and $\Omega_2 = 10^{-3}\Gamma$. In (a) $\gamma_c = 5 \times 10^{-4}\Gamma$; in (b) $\gamma_c = 0$ leads to a vanishing shift for the EIT resonance.

IV. STEADY-STATE LINE SHAPES OF CLOCK-STATE POPULATIONS ρ_{11}, ρ_{22}

A. The two-photon resonance

We focus now on clock-state resonances observed on the ρ_{11}, ρ_{22} populations and linked to the Raman coherence between those states. The clock-state populations may be expressed in an exact form similar to that of Eq. (8) as

$$\begin{aligned} \rho_{11} &= S^{11} \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_{11}] + \gamma_{11}^2}{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{\text{eff}}^2}, \\ \rho_{22} &= S^{22} \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 + \Delta_{22}] + \gamma_{22}^2}{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{\text{eff}}^2}, \end{aligned} \quad (21)$$

where

$$S^{ii} = \left(1 + \frac{\tilde{\gamma}_i \Gamma_{3i}}{2\Omega_i^2}\right) S^\Lambda, \quad (i = 1, 2),$$

$$\Delta_{11} = \bar{\gamma}_{11}(\Delta_1 + \gamma_1 \bar{\Delta}), \quad \Delta_{22} = \bar{\gamma}_{22}(\Delta_2 - \gamma_2 \bar{\Delta}), \quad (22)$$

$$\bar{\Delta} = \frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} \gamma_2 \Delta_1 - \Omega_1^2 \Gamma_{32} \gamma_1 \Delta_2}{\gamma_1 \gamma_2 (\Omega_2^2 \Gamma_{31} + \Omega_1^2 \Gamma_{32})},$$

and

$$\begin{aligned} \gamma_{11}^2 &= \gamma_c \gamma_{\text{eff}} + \bar{\gamma}_{11}(\gamma_1 \gamma_{\text{eff}} - \gamma_c \Delta_1 \bar{\Delta}), \\ \gamma_{22}^2 &= \gamma_c \gamma_{\text{eff}} + \bar{\gamma}_{22}(\gamma_2 \gamma_{\text{eff}} + \gamma_c \Delta_2 \bar{\Delta}), \end{aligned} \quad (23)$$

with

$$\begin{aligned} \bar{\gamma}_{11} &= \frac{\Gamma_{31} \Omega_2^2 + \Gamma_{32} \Omega_1^2}{2\Omega_1^2 \gamma_1 + (\Delta_1^2 + \gamma_1^2) \Gamma_{31}}, \\ \bar{\gamma}_{22} &= \frac{\Gamma_{31} \Omega_2^2 + \Gamma_{32} \Omega_1^2}{2\Omega_2^2 \gamma_2 + (\Delta_2^2 + \gamma_2^2) \Gamma_{32}}. \end{aligned} \quad (24)$$

Figure 4 reports the population resonance under various saturation conditions, matching the AT, EIT, and FF line shapes of Fig. 2. Notice that the EIT regime of Fig. 4(b) corresponds to the case of Rabi frequencies smaller than the natural decay rate of the excited state. The “Lamb-dip”-like line shape for the resulting quasaturated transition can conveniently be observed in the three-level configuration. This method of spectroscopy without Doppler broadening was proposed and experimentally accomplished by Javan and Schlossberg in [70,71]. In such a situation, the dip can be narrower than the homogeneous linewidth of the population resonance as in Fig. 4(b).

The clock-state populations depend strongly on the normalized branching ratio difference Υ and on the Rabi frequencies driving atomic or molecular transitions. A numerical analysis of [72] demonstrated the occurrence of a strong population transfer for unequal Γ_{31}, Γ_{32} decay rates. Figure 5 shows the steady-state complete population transfer for $\Omega_1 \gg \Omega_2$ and $\Upsilon \approx 1$ using the asymmetric decay rates associated to an alkaline-earth three-level system as strontium atoms [17,54]. A large coherent population transfer $\rho_{22} - \rho_{11} = \pm 1$ is achieved when $\Omega_1 \gg \Omega_2$ for $\Upsilon \sim +1$ or $\Omega_2 \gg \Omega_1$ for $\Upsilon \sim -1$.

B. Approximated frequency shift of the two-photon resonance

In an alkaline-earth frequency clock probing scheme, the large population transfer regime of Fig. 5 may be used to detect one lower state population, or the population difference between clock states. Thus, it is important to derive the two-photon shift also in this scheme. Using an analysis equivalent to the derivation of Eq. (19) when $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$, we obtain the frequency shift of ρ_{11} . For ρ_{22} , we make a similar derivation also using the population conservation condition. We obtain the following expression for $\delta\omega_{11}(\Delta_0)$ and similarly

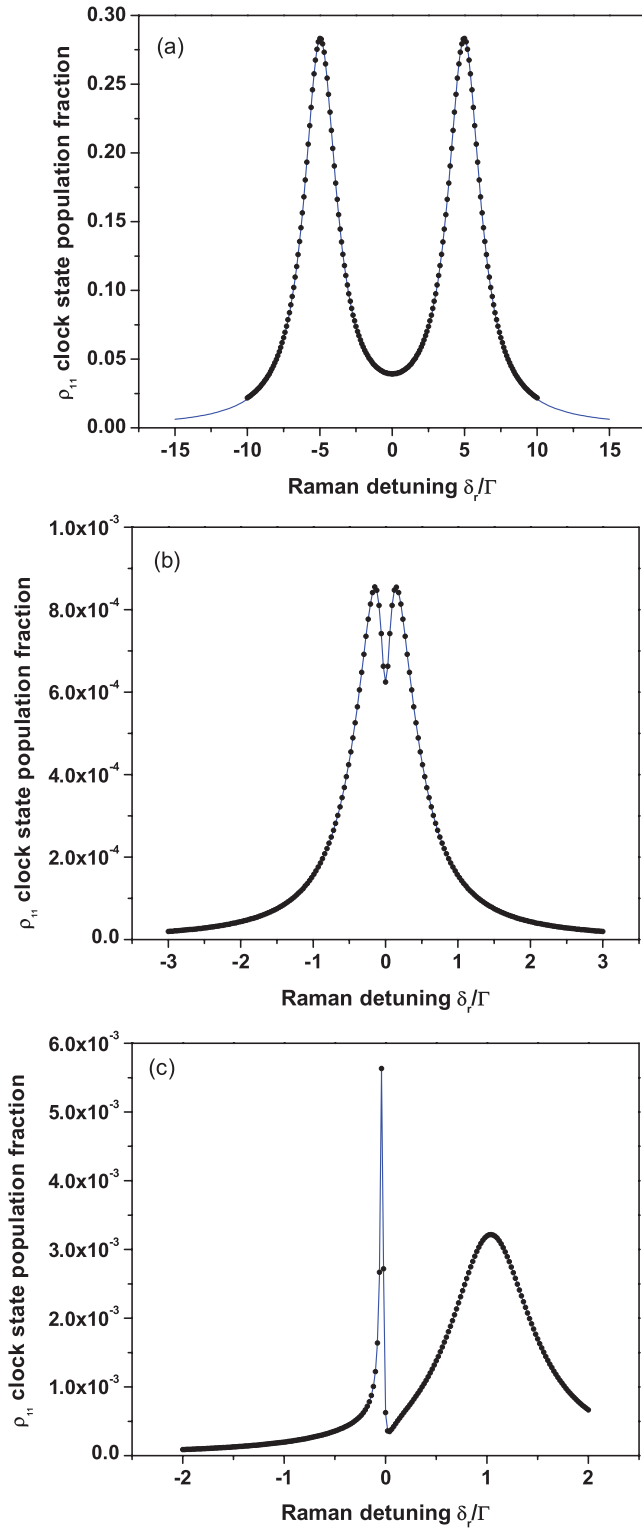


FIG. 4. (Color online) Three-level spectra vs the δ_r Raman detuning observed on the ρ_{11} population using Eq. (21), solid blue line, and the numerical integration of Eq. (4), solid dots (\bullet). In (a) AT resonance, in (b) Lamb-dip line shape, and in (c) FF resonance. System parameters as in Fig. 2. In (a) and (b), Rabi frequencies as in Fig. 2. In (c) $\Omega_1 = 0.2\Gamma$, $\Omega_2 = 5 \times 10^{-3}\Gamma$, and $\Delta_0 = \Gamma$.

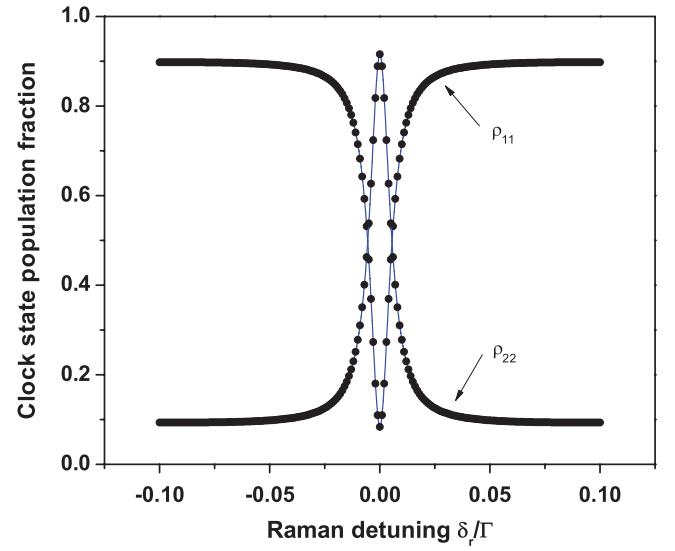


FIG. 5. (Color online) Population inversion resonance between the $|1\rangle$ and $|2\rangle$ states, monitored on ρ_{11} and ρ_{22} , for unbalanced decay rates, $\Gamma_{32} = 10^{-5}\Gamma$, $\Gamma_{31} = \Gamma - \Gamma_{32}$. Solid blue line is computed from Eq. (21), solid dots (\bullet) are the result of the numerical integration of Eq. (4). Other parameters are $\Delta_0 = 0$, $\gamma_c = 0$, $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, and $\Omega_2 = 5 \times 10^{-4}\Gamma$.

for $\delta\omega_{22}(\Delta_0)$:

$$\delta\omega_{11}(\Delta_0) \sim \delta\omega_{22}(\Delta_0) \approx \frac{\gamma_{11}^2 - \Gamma_{\text{eff}}^2}{\Delta_{11} - \Delta_f} \times \left(1 \mp \sqrt{1 + \frac{(\Delta_f - \Delta_{11})(\gamma_{11}^2 \Delta_f - \Delta_{11} \Gamma_{\text{eff}}^2)}{(\Gamma_{\text{eff}}^2 - \gamma_{11}^2)^2}} \right). \quad (25)$$

For the specific radiative configuration of alkaline-earth species shown in Fig. 5, only the solution with the minus sign is needed, but \mp solutions generally refer to the extrema of a dispersive line shape. Our standard choice of the laser detunings $\Delta_1 = \Delta_0$ and $\Delta_2 = \Delta_0 - \delta_r$ introduces a very small difference in expressions of the frequency shifts affecting each clock-state population. For a quasiresonant interaction when $\gamma_c \gamma_{\text{eff}} / \Gamma_{\text{eff}}^2 \ll 1$ with $\Delta_f / \Gamma_{\text{eff}} \ll 1$ and $\Delta_{11} / \Gamma_{\text{eff}} \ll 1$, the expression may be simplified to yield

$$\delta\omega_{11}(\Delta_0) \sim \delta\omega_{22}(\Delta_0) \approx \frac{\Delta_{11} - \frac{\gamma_{11}^2}{\Gamma_{\text{eff}}^2} \Delta_f}{2(1 - \frac{\gamma_{11}^2}{\Gamma_{\text{eff}}^2})}. \quad (26)$$

The frequency shift versus the common mode optical detuning Δ_0 affecting the ρ_{11} (equivalently ρ_{22}) resonance is plotted in Figs. 6(a) and 6(b) for two particular ratios of the relaxation rates by spontaneous emission. In both cases, the shift of the two-photon resonance measured on the ρ_{11} or ρ_{22} observables has a dispersive line shape versus the optical detuning Δ_0 . The slope is completely reversed owing to a nonlinear behavior when the ratio $\Upsilon \mapsto 1$ as in Fig. 6(b). A comparison with the frequency shift of the excited state ρ_{33} is also included in the figure. Notice the difference in the ρ_{11}/ρ_{33} shifts for the case of a large asymmetry in the spontaneous decay rates.

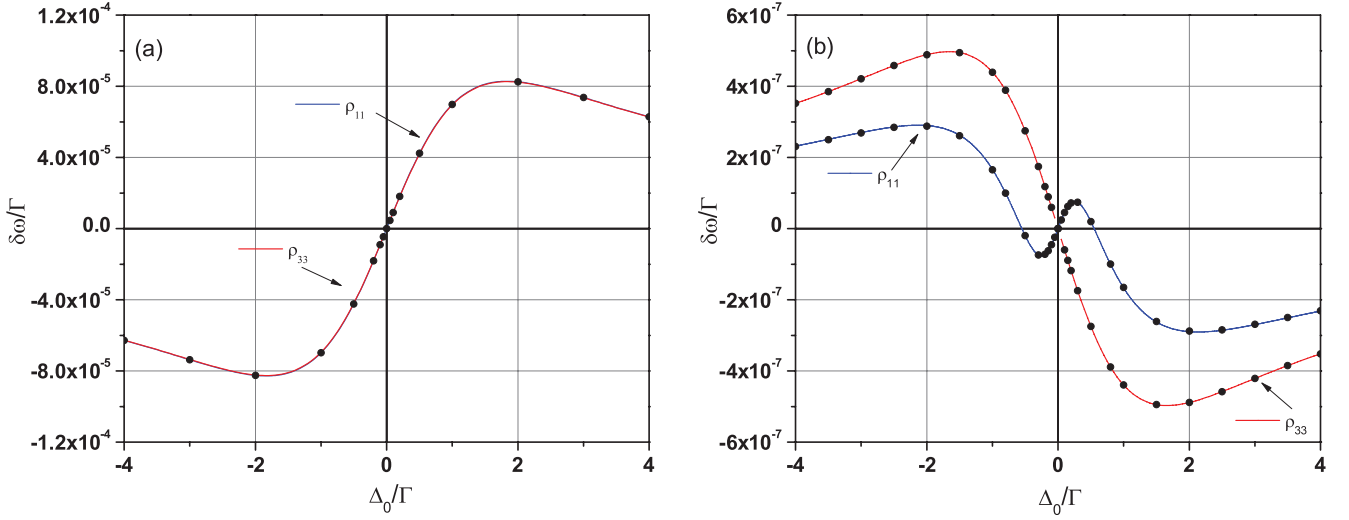


FIG. 6. (Color online) Frequency shift of the population inversion resonance observed on ρ_{11} (or ρ_{22}) as derived from Eq. (25) (solid blue line) and frequency shift of the ρ_{33} EIT resonance from Eq. (19) (solid red line) vs the optical detuning Δ_0 , for unbalanced decay rates. Solid dots (•) are from the numerical integration of Eq. (4) with parameters $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, $\gamma_c = 510^{-4}\Gamma$, and $\Omega_2 = 5 \times 10^{-4}\Gamma$. In (a) $\Gamma_{32} = 10^{-5}\Gamma$ and $\Gamma_{31} = \Gamma - \Gamma_{32}$. Note that the $\delta\omega_{33}$ shift is indistinguishable from the $\delta\omega_{11}$ shift. In (b) $\Gamma_{32} = 10^{-10}\Gamma$ and $\Gamma_{31} = \Gamma - \Gamma_{32}$.

V. STEADY-STATE LINE SHAPE OF RAMAN COHERENCE ρ_{12}

A. The Raman coherence resonance

We are now focusing on the steady state Raman coherence resonance $\rho_{12} = \text{Re}\{\rho_{12}\} + i\text{Im}\{\rho_{12}\}$ given by

$$\begin{aligned} \text{Re}\{\rho_{12}\} &= \Gamma_{12} S^\Lambda \frac{(\Delta_1 - \Delta_2)\bar{\Delta} - \gamma_{\text{eff}}}{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{\text{eff}}^2}, \\ \text{Im}\{\rho_{12}\} &= \Gamma_{12} S^\Lambda \frac{(\Delta_1 - \Delta_2) + \bar{\Delta}\gamma_c}{(\Delta_1 - \Delta_2)[\Delta_1 - \Delta_2 - \Delta_f] + \Gamma_{\text{eff}}^2}, \end{aligned} \quad (27)$$

with

$$\Gamma_{12} = \frac{\Omega_2^2 \Gamma_{31} + \Omega_1^2 \Gamma_{32}}{2\Omega_1 \Omega_2}. \quad (28)$$

When the dipole transition is allowed, the Raman coherence resonance can be detected in several manners. If we deal with alkaline atoms, such as Cs or Rb, the hyperfine Raman coherence might be detected as a microwave emission proportional to $|\rho_{12}|^2$, inserting the atomic medium into a microwave cavity [73]. Figure 7 shows $|\rho_{12}|^2$ versus the Raman detuning condition δ_r when $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$ at different values of Δ_0 . The dispersive behavior of $\text{Re}\{\rho_{12}\}$ leads to a second resonant peak, appearing when $\Delta_0 > 3\Gamma$ as seen in Figs. 7(b) and 7(c).

B. Approximated frequency shifts of the Raman coherence resonance

We derive here an accurate expression for the frequency-shifted resonance of $|\rho_{12}|^2$ when $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$. A cubic equation is derived from the analytical differentiation of $|\rho_{12}|^2$ of Eq. (27) with respect to the Raman detuning δ_r . Using Cardan's solutions, the three roots are written

as

$$\begin{aligned} \delta\omega_{12}(\Delta_0) &\sim -\frac{b}{3a} + \sqrt{-\frac{p}{3}} \cos\left[\frac{1}{3} \cos^{-1}\left(-\frac{3q}{p} \sqrt{-\frac{3}{p^3}}\right) + 2k\frac{\pi}{3}\right], \end{aligned} \quad (29)$$

with $k = 0, 1, 2$, the p ($p < 0$) and q given by

$$p = \frac{3ac - b^2}{3a^2}, \quad q = \frac{2b^3 - 9abc + 27a^2d}{27a^3}, \quad (30)$$

and

$$\begin{aligned} a &= -1 - \bar{\Delta}^2, \\ b &= 3\bar{\Delta}(\gamma_{\text{eff}} - \gamma_c), \\ c &= -2(\gamma_c^2 \bar{\Delta}^2 + \gamma_{\text{eff}}^2) + \Gamma_{\text{eff}}^2(1 + \bar{\Delta}^2) \\ &\quad + \Delta_f \bar{\Delta}(\gamma_c + \gamma_{\text{eff}}), \\ d &= \Gamma_{\text{eff}}^2 \bar{\Delta}(\gamma_c + \gamma_{\text{eff}}) + \Delta_f(\gamma_c^2 \bar{\Delta}^2 + \gamma_{\text{eff}}^2). \end{aligned} \quad (31)$$

Equation (29) allows us to obtain the frequency shift as a function of the common mode optical detuning Δ_0 plotted in Fig. 8. However an estimate of that shift is obtained looking only at the real part of the coherence solution which mainly describes the line shape emission. From the square modulus of the real part $|\text{Re}\{\rho_{12}\}|^2$, simple cubic solutions for the Raman coherence frequency shift can be derived as

$$\delta\omega_{12}(\Delta_0) \sim \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\Delta} \left[1 \mp \sqrt{1 + \frac{\bar{\Delta}\Gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}}} \left(\frac{\bar{\Delta}\Gamma_{\text{eff}}}{\gamma_{\text{eff}}} - \frac{\Delta_f}{\Gamma_{\text{eff}}} \right)} \right], \quad (32)$$

or

$$\delta\omega_{12}(\Delta_0) \sim \frac{\gamma_{\text{eff}}}{\Delta}. \quad (33)$$

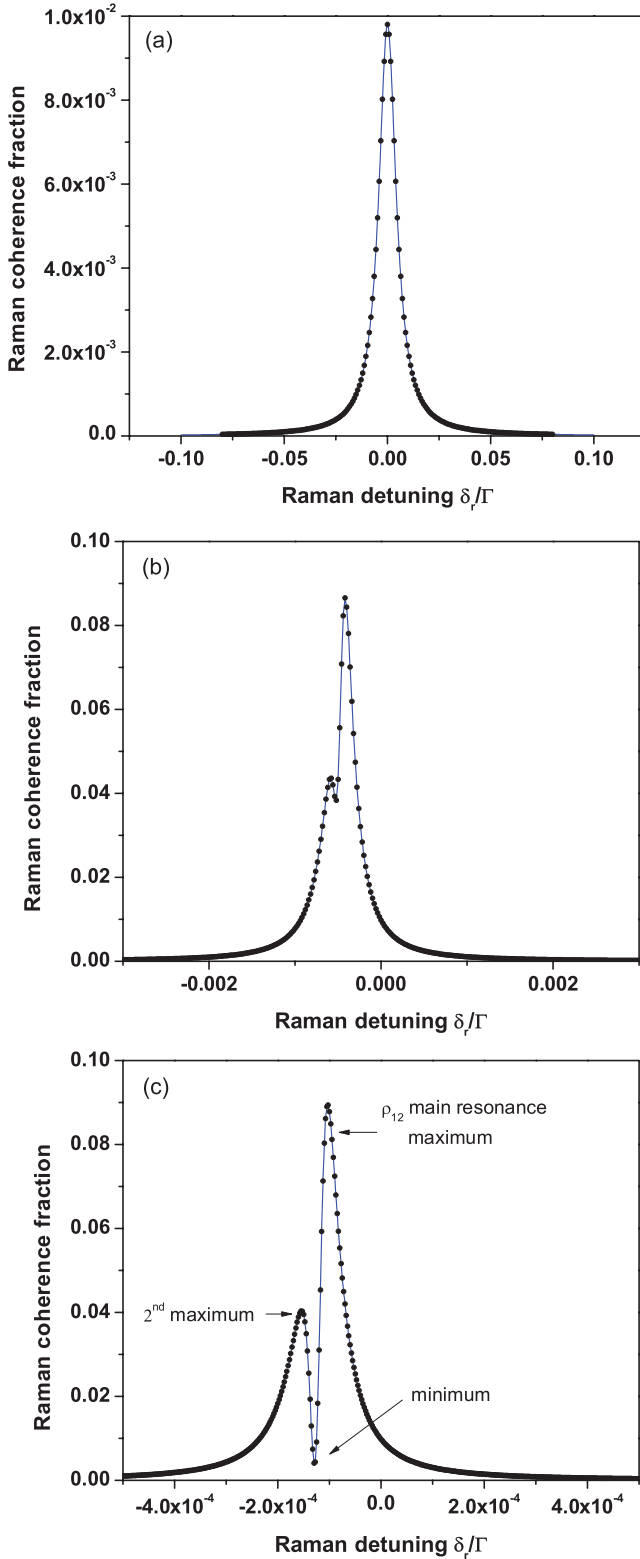


FIG. 7. (Color online) (a) Steady-state line shapes of the $|\rho_{12}|^2$ square modulus vs δ_r using Eq. (27) (solid blue line) for $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, $\Omega_2 = 5 \times 10^{-3}\Gamma$, and $\gamma_c = 0$. In (a) $\Delta_0 = 0$, in (b) $\Delta_0 = 5\Gamma$, and in (c) $\Delta_0 = 20\Gamma$. Solid dots (\bullet) are from the numerical integration of Eq. (4).

When $\bar{\Delta}\Gamma_{\text{eff}}/\gamma_{\text{eff}} \ll 1$ and $\Delta_f/\Gamma_{\text{eff}} \ll 1$, the Raman coherence frequency-shift expression corresponding to the maximum emission becomes

$$\delta\omega_{12}(\Delta_0) \sim \frac{\Delta_f}{2}. \quad (34)$$

For that case, we recover the usual dispersive shape related to the light-shift Δ_{LS} affecting clock states. The frequency shift versus the common mode optical detuning Δ_0 derived from Eq. (29) is shown in Fig. 8(a) for the case of a symmetric radiative configuration with $\Gamma_{31} = \Gamma_{32}$ while in Fig. 8(b) for $\Gamma_{31} \gg \Gamma_{32}$. The central dispersive feature, related to the Raman shift expression Δ_f , corresponds to the maximum of the coherent emission. Other branches of the shift correspond to the extrema of the second resonance appearing for $\Delta_0 > 3\Gamma$ as from the line shape simulation of Fig. 7(b). A direct comparison of Fig. 8(b) with frequency shifts reported in Fig. 6 with similar conditions yield to Raman coherence shifts larger by more than an order of magnitude than population frequency shifts.

VI. DARK-RESONANCE FRINGES

A. Pulsed regime line shape

The clock operation may be based on a pulsed Raman-Ramsey scheme, illustrated in Fig. 9, with beating oscillations observed whichever variable is monitored. This detection approach, originally introduced in [53], was refined in [50,51] and discussed in Refs. [54–56]. It allows us to reach a higher precision in the clock frequency measurement, as typical of the Ramsey fringes. The present work focuses on the laser pulse scheme where the first pulse is long enough to allow the atomic or molecular preparation into the dark state superposition and the second delayed short pulse probing that superposition. Because the τ_p pumping time of Eq. (5) is required to reach the steady-state atomic or molecular preparation into the dark state, the length of the first pulse should satisfy $\tau \gg \tau_p(\Delta_0) \gg \Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1}$. From a mathematical point of view, the $\tau \mapsto \infty$ steady state solution of the three-level optical Bloch equations may thus be used as initial condition for determining the evolution at later times. At time τ the laser fields are switched off in order to allow for a free evolution over the time T . Finally a readout operation is performed by applying a short pulse whose time duration τ_m is limited by $\Gamma_{31}^{-1}, \Gamma_{32}^{-1} < \tau_m \ll \tau_p(\Delta_0)$. In this adiabatic regime where $d\rho_{33}(t)/dt = d\rho_{13}(t)/dt = d\rho_{23}(t)/dt \equiv 0$, the short probe pulse operation is well described using the $\tau_m \mapsto 0$ limit. For a readout pulse as long as the preparation pulse, all atoms or molecules are repumped into a new dark state erasing interference fringes. Interferences fringes are detectable on all observables as a function of the T time delay, with very short readout pulses required for optical coherences and the excited state population fraction. Instead longer probing times are required for monitoring fringes on lower state populations due to slow time evolution of the clock states and the Raman coherence.

An analytical expression of the population fraction in the excited state can be established from Eq. (4) in the asymptotic limit of a long preparation pulse and a vanishing read out pulse, i.e., at the end of the free evolution time. In this regime, a pulsed

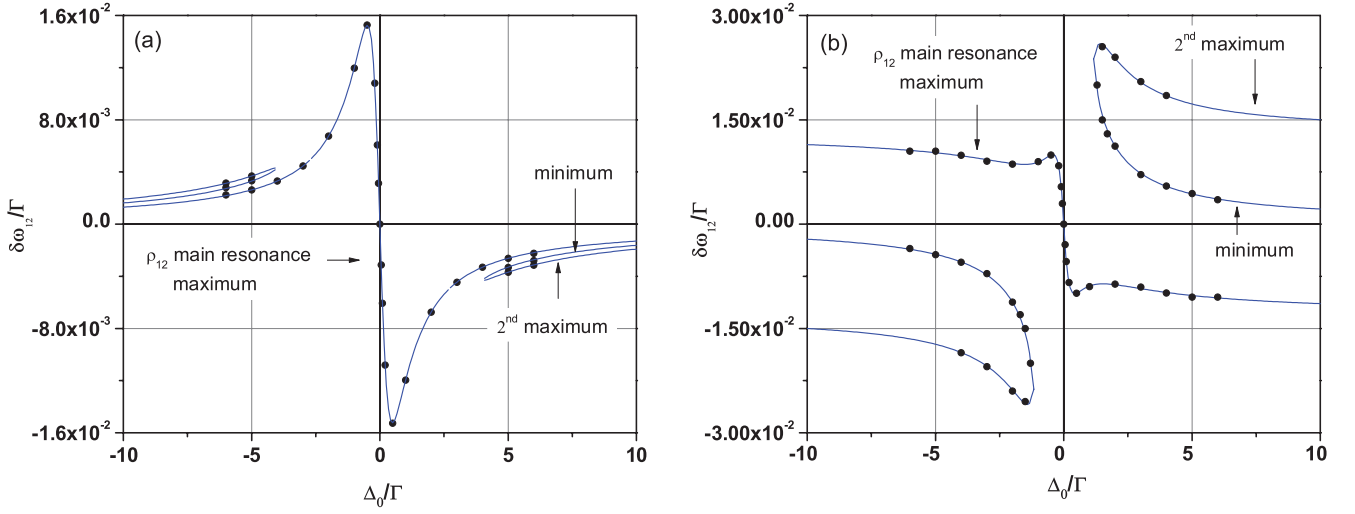


FIG. 8. (Color online) (a) Frequency shift of the Raman coherence resonances observed on the $|\rho_{12}|^2$ as derived from Eq. (29) (solid blue line) vs the optical detuning Δ_0 . In (a) we have a symmetric radiative configuration with $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, where $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, $\Omega_2 = 5 \times 10^{-3}\Gamma$, and $\gamma_c = 0$. In (b) we have an asymmetric radiative configuration with $\Gamma_{31} = \Gamma - \Gamma_{32}$ and $\Gamma_{32} = 10^{-5}\Gamma$, where $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, $\Omega_2 = 5 \times 10^{-4}\Gamma$, and $\gamma_c = 510^{-4}\Gamma$. Solid dots (•) are from the numerical integration of Eq. (4).

DR expression $\rho_{33}(T)$ and related transmission parts of the $\text{Im}\{\rho_{13}\}(T), \text{Im}\{\rho_{23}\}(T)$ optical coherences can be rewritten in the exact $\alpha_{ij}[1 + \beta_{ij}|\rho_{12}|e^{-\gamma_c T} \cos(\delta_r T - \Phi_{ij})]$ form:

$$\begin{aligned} \rho_{33}(T) &= \alpha_{33}[1 + \beta_{33}|\rho_{12}|e^{-\gamma_c T} \cos(\delta_r T - \Phi_{33})], \\ \alpha_{33} &= \frac{\Omega_2^2(\Delta n + 1)/\Gamma\tilde{\gamma}_2 - \Omega_1^2(\Delta n - 1)/\Gamma\tilde{\gamma}_1}{1 + \frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 + \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2)}, \\ \beta_{33} &= \frac{\sqrt{\mu_{\gamma 33}^2 + \mu_{\Delta 33}^2}}{\alpha_{33}}, \\ \text{Im}\{\rho_{13}\}(T) &= \alpha_{13}[1 + \beta_{13}|\rho_{12}|e^{-\gamma_c T} \cos(\delta_r T - \Phi_{13})], \\ \alpha_{13} &= \frac{\Omega_1}{2\tilde{\gamma}_1}[3\alpha_{33} + (\Delta n - 1)], \end{aligned} \quad (35)$$

$$\beta_{13} = \frac{\sqrt{\mu_{\gamma 13}^2 + \mu_{\Delta 13}^2}}{\alpha_{13}}, \quad (36)$$

$$\begin{aligned} \text{Im}\{\rho_{23}\}(T) &= \alpha_{23}[1 + \beta_{23}|\rho_{12}|e^{-\gamma_c T} \cos(\delta_r T - \Phi_{23})], \\ \alpha_{23} &= \frac{\Omega_2}{2\tilde{\gamma}_2}[3\alpha_{33} - (\Delta n + 1)], \end{aligned} \quad (37)$$

$$\beta_{23} = \frac{\sqrt{\mu_{\gamma 23}^2 + \mu_{\Delta 23}^2}}{\alpha_{23}}.$$

where $\Delta n = \rho_{22} - \rho_{11}$ is the steady-state clock-state population difference obtained from Eq. (21) and $|\rho_{12}|$ is given by Eq. (27). The following quantities were introduced in the above expressions:

$$\mu_{\gamma 33} = \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Gamma} \left(\frac{(\tilde{\gamma}_1 + \tilde{\gamma}_2)/\tilde{\gamma}_1\tilde{\gamma}_2}{1 + \frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 + \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2)} \right), \quad (38)$$

$$\mu_{\Delta 33} = \frac{2\Omega_1\Omega_2}{\Gamma} \left(\frac{\Delta_1/\tilde{\gamma}_1\gamma_1 - \Delta_2/\tilde{\gamma}_2\gamma_2}{1 + \frac{3}{\Gamma}(\Omega_1^2/\tilde{\gamma}_1 + \Omega_2^2/\tilde{\gamma}_2)} \right),$$

$$\mu_{\gamma 13} = \frac{3}{2} \frac{\Omega_1}{\tilde{\gamma}_1} \mu_{\gamma 33} - \frac{\Omega_2}{\tilde{\gamma}_1}, \quad (39)$$

$$\mu_{\Delta 13} = \frac{3}{2} \frac{\Omega_1}{\tilde{\gamma}_1} \mu_{\Delta 33} - \Omega_2 \frac{\Delta_1}{\gamma_1\tilde{\gamma}_1},$$

$$\mu_{\gamma 23} = \frac{3}{2} \frac{\Omega_2}{\tilde{\gamma}_2} \mu_{\gamma 33} - \frac{\Omega_1}{\tilde{\gamma}_2}, \quad (40)$$

$$\mu_{\Delta 23} = \frac{3}{2} \frac{\Omega_2}{\tilde{\gamma}_2} \mu_{\Delta 33} + \Omega_1 \frac{\Delta_2}{\gamma_2\tilde{\gamma}_2}.$$

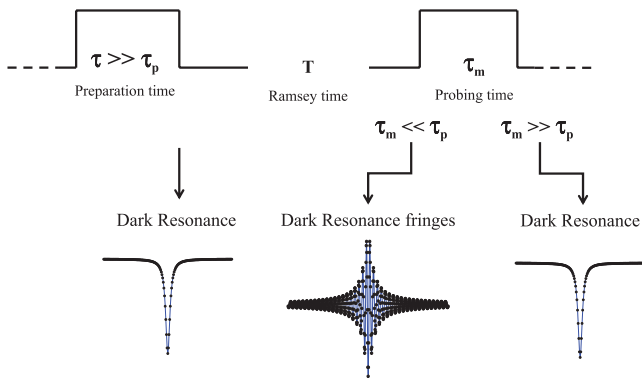


FIG. 9. (Color online) Pulsed dark-resonance detection scheme to perform high-resolution spectroscopy of three-level Λ systems. T is the Ramsey time when both laser light fields Ω_1, Ω_2 are switched off. The first pulse is long enough, $\tau \gg \tau_p(\Delta_0)$, to reach the stationary regime. During the second pulse, the probing time can be short, $\tau_m \ll \tau_p(\Delta_0)$, to observe dark-resonance fringes or long, $\tau_m \gg \tau_p(\Delta_0)$, to recover a cw dark resonance as a new preparation stage for the next pulse.

In the nonasymptotic limit where $\tau \sim \tau_m \sim \tau_p$, stationary solutions of $|\rho_{12}|$ and Δn have to be replaced by their transient expressions $|\rho_{12}(\tau, \tau_m)|$ and $\Delta n(\tau, \tau_m)$. When, $T \mapsto 0$, the line shape expression from Eq. (35) is formally equivalent to Eq. (8). A pulsed DR line shape is plotted in Fig. 10 (a) for small values of Rabi frequencies with a magnified

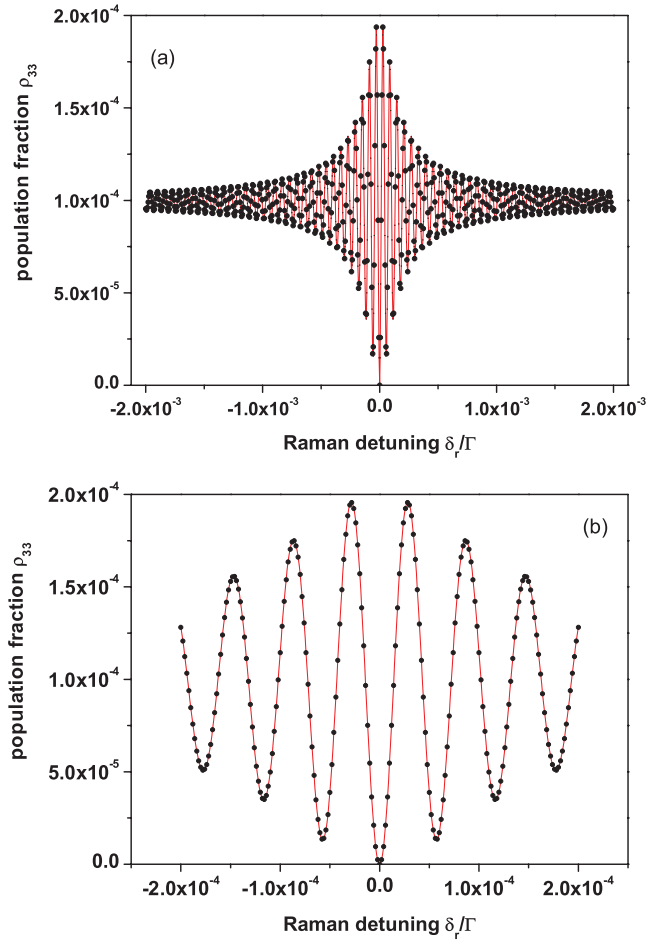


FIG. 10. (Color online) (a) Dark-resonance fringes in the weak field limit. (b) Frequency span of the line shape. Lines from Eq. (35) and dots (•) from Bloch's equations [Eq. (4)]. Common parameters: $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\Delta_0 = 0$, $\gamma_c = 0$, and $T = 10\tau_p(0)$. In (a) and (b) Rabi frequencies $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.005\Gamma$, free evolution time $T = 10\tau_p(0)$, and probe time $\tau_m \sim 0.004\tau_p(0)$. Very good agreement between Eqs. (4) and (35) results.

span on the central fringe in Fig. 10(b). In these plots, the agreement between Eq. (35) (solid red lines) and the Bloch's equations (dots •) is very accurate. We have also studied the role of the Ramsey time T on the DR line shape and amplitude. Figures 11(a)–11(c) show the signal amplitude versus the Raman detuning for different values of T . The fringe amplitude is always twice the amplitude in the cw regime when $2T > \Gamma_{\text{eff}}^{-1}$ and $\gamma_c = 0$. A careful comparison between Fig. 10 and Figs. 11(b) and 11(c) show that for Rabi frequencies comparable to the Γ_{31}, Γ_{32} relaxation rates, i.e., when saturation becomes important, the limit $\tau_m \mapsto 0$ used to obtain Eq. (35) is no longer valid, and the effect of the readout duration pulse length τ_m has to be included into the analysis leading to a slight reduction of the fringe amplitude.

B. Stationary atomic or molecular Raman phase

The fringe signals appearing in the atomic observables are produced by the $\cos(\delta_r T - \Phi_{ij})$ terms appearing in

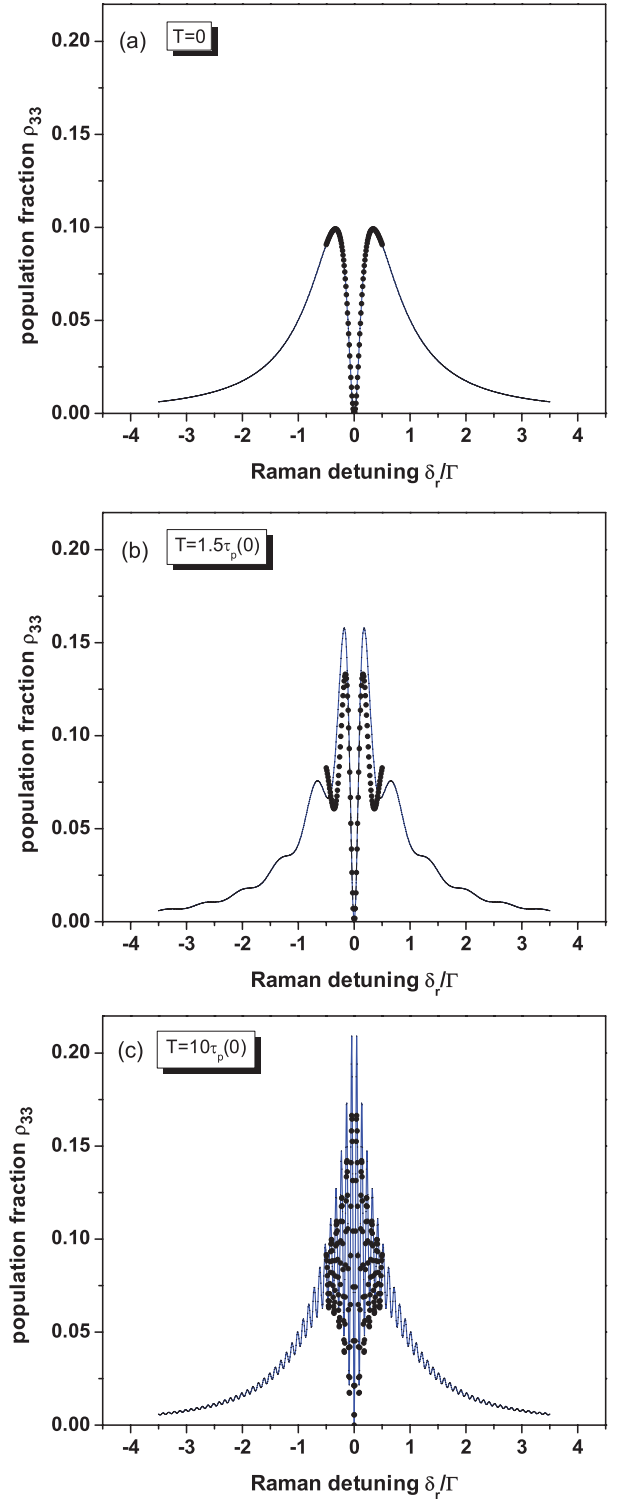


FIG. 11. (Color online) DR line shapes in strong laser fields computed from Eq. (35) vs Raman detuning for different values of Ramsey time T . Parameters $\Omega_1 = \Omega_2 = 0.2\Gamma$, $\Gamma_{31} = \Gamma_{32} = \Gamma/2$, $\Delta_0 = 0$, and $\gamma_c = 0$. Solid dots (•) from Bloch's equations [Eq. (4)] with $\tau = 10\tau_p(0)$. In (b) and (c) $\tau_m = 0.75\tau_p(0)$.

the above expressions. Within a narrow region around the resonance, the line shape is entirely described by a phase given

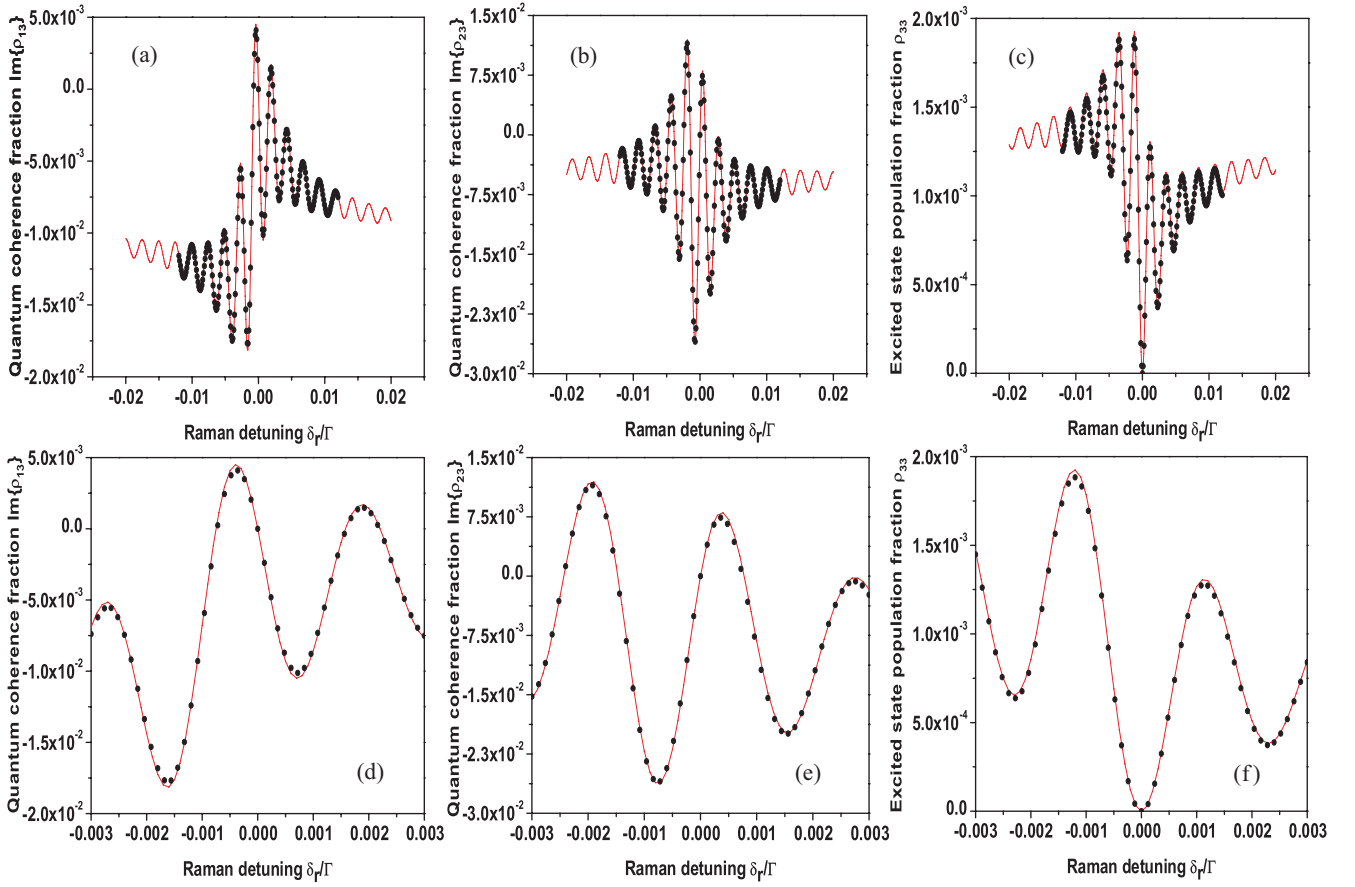


FIG. 12. (Color online) Asymmetric fringes observed on the imaginary parts of optical coherences, (a) $\text{Im}\{\rho_{13}\}(T)$ and (b) $\text{Im}\{\rho_{23}\}(T)$, and on the excited population (c) ρ_{33} vs Raman frequency detuning. In (d), (e), and (f), expanded views of the central resonance fringe for each observable are shown. Parameters $\Gamma_{31} = 0.8\Gamma$, $\Gamma_{32} = 0.2\Gamma$, $\Delta_0 = \Gamma$, $\gamma_c = 0$, $\Omega_1 = 5.10^{-2}\Gamma$, $\Omega_2 = 2.5 \times 10^{-2}\Gamma$, free evolution time $T = 10\tau_p(0)$, $\tau > 10\tau_p(\Gamma)$, and $\tau_m \sim 5.5 \times 10^{-3}\tau_p(\Gamma)$. Solid lines from the analytical forms of Eqs. (36), (37), and (35), respectively, are in good agreement with the solid dots (•) results from Bloch's equations [Eq. (4)].

by

$$\begin{aligned}\Phi_{33} &= \text{Arctan} \left[\frac{\mu_{\gamma 33} \text{Im}\{\rho_{12}\} - \mu_{\Delta 33} \text{Re}\{\rho_{12}\}}{\mu_{\gamma 33} \text{Re}\{\rho_{12}\} + \mu_{\Delta 33} \text{Im}\{\rho_{12}\}} \right], \\ \Phi_{13} &= \text{Arctan} \left[\frac{\mu_{\gamma 13} \text{Im}\{\rho_{12}\} - \mu_{\Delta 13} \text{Re}\{\rho_{12}\}}{\mu_{\gamma 13} \text{Re}\{\rho_{12}\} + \mu_{\Delta 13} \text{Im}\{\rho_{12}\}} \right], \\ \Phi_{23} &= \text{Arctan} \left[\frac{\mu_{\gamma 23} \text{Im}\{\rho_{12}\} - \mu_{\Delta 23} \text{Re}\{\rho_{12}\}}{\mu_{\gamma 23} \text{Re}\{\rho_{12}\} + \mu_{\Delta 23} \text{Im}\{\rho_{12}\}} \right].\end{aligned}\quad (41)$$

In the adiabatic regime, for a first pulse producing a steady state and a second pulse with a short duration, the $|\rho_{12}|$ steady state solution of Eq. (27) leads to cw expressions of Φ_{ij} ($i, j = 1, 2, 3$) where all time dependencies are absent. For clock engineering, it is important to quantify the shift of the central fringe when the common mode optical detuning $\Delta_1 \sim \Delta_2 \sim \Delta_0$ is scanned around the $\delta_r = 0$ resonant value. Within the limit of a long first pulse and a short second pulse, in the weak field regime and for a sufficiently large Ramsey time [$T \gg \tau_p(\Delta_0), \tau_m$], the central fringe frequency-shift $\delta\omega_{ij}^{\text{fr}}$ should be connected to the Φ_{ij} phase accumulation. Time-dependent Raman frequency shifts produced by short preparation pulses were examined in details in Refs. [57,58] using the Bloch vector model, but only for the excited state

population. A complex wave-function formalism was also proposed for short pulses in [54] and extended in Ref. [55] to derive analytical time-dependent expressions of any frequency shift affecting the central fringe related to each possible observable.

Figures 12(a)–12(c) report the fringes appearing on the imaginary parts $\text{Im}\{\rho_{13}\}(T)$, $\text{Im}\{\rho_{23}\}(T)$ and on the excited state population $\rho_{33}(T)$ for an asymmetrical radiative configuration with $\Gamma_{31} = 0.8\Gamma$ and $\Gamma_{32} = 0.2\Gamma$, a detuned laser excitation ($\Delta_0 = \Gamma$) with no Raman decoherence ($\gamma_c = 0$). Plots from Figs. 12(d)–12(f) report a magnified span on the central fringe. The plots in Figs. 12(a) and 12(b) for the optical coherences show asymmetrical line shapes with the central fringe being blue or red shifted from the exact Raman resonance, a behavior different from that observed in the cw regime. For the excited state fraction plotted in Fig. 12(c) under the same conditions, the central fringe is not frequency shifted, as in the cw regime. These results point out, for the first time, that the imaginary parts of optical coherences, when individually probed, have a line shape different from that observed on the excited state response due to asymmetric decay rates by spontaneous emission.

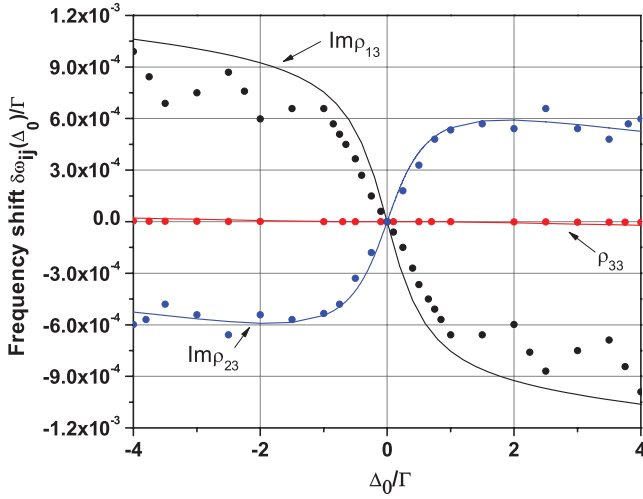


FIG. 13. (Color online) Exact numerical tracking of fringe frequency-shifts $\delta\omega_{13}^{\text{fr}}$, $\delta\omega_{23}^{\text{fr}}$, and $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ vs Δ_0 derived from Eqs. (35), (36), and (37) (solid lines). Parameters $\Gamma_{31} = 0.8\Gamma$, $\Gamma_{32} = 0.2\Gamma$, $\gamma_c = 5 \times 10^{-4}\Gamma$, $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$, $\Omega_2 = 3.7515 \times 10^{-2}\Gamma$, and $T = 10\tau_p(0)$. Solid dots (•) from Bloch's equations [Eq. (4)], where we use $\tau > 10\tau_p(\Gamma)$ and $\tau_m \sim 5.5 \times 10^{-3}\tau_p(\Gamma)$. The discrepancy between solid lines and dots are here due to the nonvanishing τ_m readout time required with a numerical integration of Bloch's equations.

This different behavior is also confirmed by the plots of Fig. 13 focusing on dark-resonance fringe frequency shifts versus the common mode optical detuning Δ_0 when assuming a small decoherence term $\gamma_c = 5 \times 10^{-4}\Gamma$. Figure 13 shows the numerical tracking of frequency shifts from the Eqs. (35), (36), and (37) analytical form compared to the integration of Bloch's equations [Eq. (4)] (solid dots) for a particular ratio between Rabi frequencies. Oscillations around the numerical track of frequency shifts are observed for large optical detunings due to the nonvanishing τ_m readout time used with Eqs. (4). Figure 14 evidences a very weak slope near

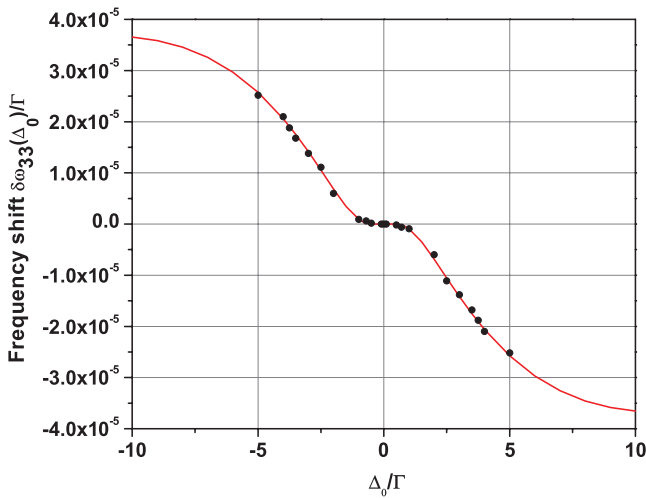


FIG. 14. (Color online) Exact numerical tracking of the dark-resonance fringe frequency-shift $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ vs Δ_0 derived from Eq. (35) (solid line). Solid dots (•) are plotted from Bloch's equations [Eq. (4)] with parameters as in Fig. 13.

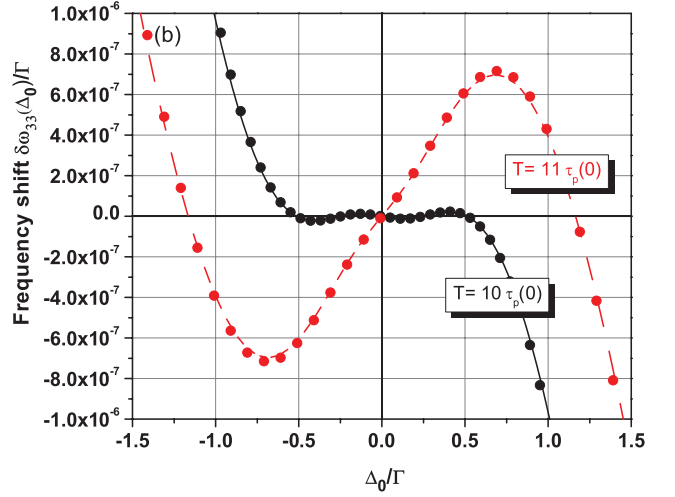
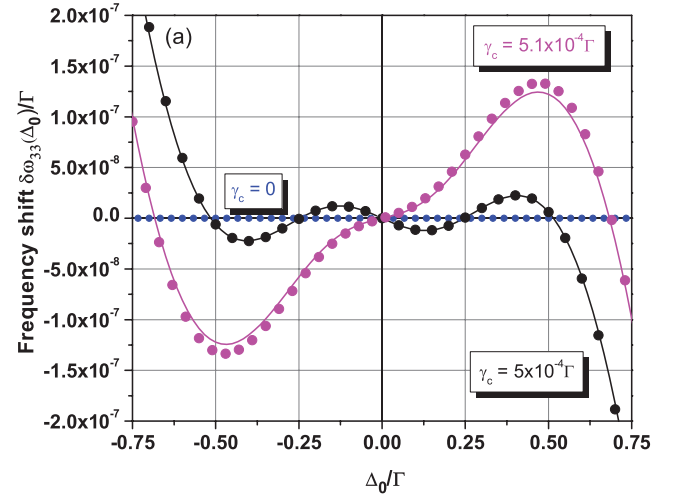


FIG. 15. (Color online) (a) Expanded view of the fringe frequency-shift numerical tracking $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ from Fig. 14 for various values of the small decoherence γ_c term. (b) Exact numerical frequency-shift $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}(\Delta_0)$ with different Ramsey time T for the particular ratio $\Omega_2/\Omega_1 \sim 0.75$ where $\Omega_1 = 5 \times 10^{-2}\Gamma$ and $\gamma_c = 5 \times 10^{-4}\Gamma$. Solid dots in the (a) and (b) cases are plotted from the analytical first order expansion of the Raman shift using Eq. (B10). Note the oscillating pattern with the small amplitude.

optical resonance; such dependence does not appear on the imaginary parts of the optical transmission. In absence of the γ_c decoherence, the excited state dependence was recently discussed in works [74,75] dealing with the time-dependant part of the Raman-Ramsey fringes reported earlier in [57,58].

A perturbative expansion of Eq. (35) in the Raman detuning parameter is required to derive the correct nonlinear behavior of the frequency shift versus the Δ_0 detuning, as reported in Eq. (B10). Those dependencies (solid dots) are plotted in Fig. 15 for $\Omega_2/\Omega_1 \sim 0.75$ and compared to the numerical tracking shift of the fringe minimum from Eq. (35) (solid lines). A nonlinear behavior with small oscillations around the optical resonance is correctly described. Increasing the time T , there is a small rotation of the frequency shift around the $\Delta_0 = 0$ common mode detuning as shown in Fig. 15(b). This dependence appears only for a nonvanishing γ_c decoherence

rate. For a given value of T , at specific values of the optical detuning, an exact cancellation of the frequency shift takes place as seen in Fig. 15(b).

VII. CONCLUSION

Three-level systems interacting with two coherent laser fields give rise to many phenomena, such as the Autler-Townes doublet, the dark or EIT resonance, and the Fano-Feshbach transition. In all of them the Raman coherence, playing an essential role, is highly sensitive to the parameters of the laser interaction and of the decoherence processes. The present work explored how those parameters may be tuned for future optical clock devices providing sensitive measurements of energy levels shifts in neutral atom clocks based on either fermionic or bosonic atomic species, for example, in dipolar traps [76] or in trapped ion clocks [77].

The three-level phenomena are well described by the formalism of the Bloch's equations in a semiclassical density matrix representation. From the exact resolution of Bloch's equations, we have derived general analytic expressions of the resonance line shapes observed in the steady state of different atomic observables. We have examined the linewidth and power broadening of the two-photon resonance. The precise dependence of the frequency shift associated to the Fano-Feshbach transition or to the EIT resonance, not appearing in a perturbation treatment, was discussed. We have examined the resonance fluorescence and frequency shift for a pulsed laser configuration in the adiabatic regime. The analytical but asymptotic solution allows us to write the line shape solution of the narrow quantum resonance leading to the formation of dark-resonance fringes. The pulsed sequence overcomes the power broadening mechanism of the continuous-wave excitation while allowing high contrasted signals in a saturation regime. In the weak field limit, signals in pulsed regimes are two times the continuous-wave signals, except for the decrease due to the Raman coherence relaxation within the atomic free evolution. The lower limit to the resonance linewidth is $1/2T$ to be compared to the Γ_{eff} limit in the steady-state case. The resonance shift is still proportional to the γ_c decoherence as for the steady state regime, but it is now diluted over the Ramsey time.

An important and original result of our analysis is that different atomic or molecular quantum observables (excited population, clock-state populations, and Raman coherence) experience different nonlinear line shapes and therefore different shifts of the clock resonance. Depending on the atomic parameters, the cw shifts of those observables may greatly differ in slopes, magnitude, or line shape. The shift amplitudes are also strongly related to the values of the decay channels, either balanced or unbalanced. For instance, while a large clock-population inversion is produced for unbalanced decay channels, a dispersive line shape is associated to its frequency shift. The detection of the Raman coherence exhibits a larger contrast, but it suffers usually from a systematic shift larger by an order of magnitude than that associated to the population detection. In the case of a very small decay rate for the Raman coherence, destructive interferences strongly reduce the cw frequency-shift sensitivity of the excited state compared to others observables. Thus the choice of the observable is very

important for the proper operation of a three-level atomic or molecular clock. Additional technical constraints are associated to the requested detection tools of the chosen observable. For instance tracking the excited state population fraction by monitoring spontaneous emission or light transmission represents a sort of nondemolition quantum measurement avoiding the destructive readout associated to the lower-state clock projection.

The present solution can be extended to the case of a train of laser pulses having different frequencies, optical detunings, and phase steps as in Refs. [78,79], in order to design more elaborate combinations of optical transient nutations and free evolutions and to explore a more efficient detection scheme for very narrow transitions. For a treatment of the atom or molecule motion in matter wave interferometry [80], for instance, based on a pulsed EIT/Raman interaction with a resonant excitation scheme and using stimulated photon recoils to create a beam splitter, the Bloch's set of Eq. (4) requires both the introduction of the recoil shift into the laser detunings and the recoil spread among different atomic momentum classes produced by spontaneous emission yielding to a full set of quantum coupled equations [81].

ACKNOWLEDGMENTS

We would like to deeply thank Christof Janssen for a careful reading of the paper. T.Z.W is also extremely grateful to LPMMA for making possible the final completion of this work. T.Z.W would like to address his highest acknowledgment to J. Ye from JILA-NIST for supporting over a long time our ideas on three-level coherence for optical clocks.

APPENDIX A: GENERALIZED MULTIPHOTON STEADY-STATE RATE SOLUTIONS

The line shape expressions of Eqs. (8) and (21) may be recast in a different mathematical form using the generalized multiphoton rate solution of Ref. [43], later employed in Ref. [44] to establish conditions for the coherent population trapping in the steady-state regime. That analysis is based on three coupled equations for the $P_{ii}(Z)$, with $i = 1, 2, 3$, occupation probabilities of the three levels, equations written in the Laplace space of variable Z . This approach shown in Fig. (16) allows a reduction in the size of the linearly coupled equation system to be solved. The three-level populations are obtained as follows:

$$\rho_{ii} = \lim_{t \rightarrow \infty} P_{ii}(t) = \lim_{Z \rightarrow 0} Z P_{ii}(Z). \quad (\text{A1})$$

From the steady-state solutions of Refs. [43,44], we obtain

$$\begin{aligned} \rho_{33} &= \frac{w_{12}w_{23} + w_{13}(w_{12} + w_{23})}{3w_{13}w_{12} + \Gamma_{32}W_{11} + \Gamma_{31}W_{22} + 3w_{23}W_{33}}, \\ \rho_{22} &= \frac{w_{12}w_{13} + \Gamma_{31}w_{12} + \Gamma_{32}(w_{13} + w_{12}) + w_{23}W_{33}}{3w_{13}w_{12} + \Gamma_{32}W_{11} + \Gamma_{31}W_{22} + 3w_{23}W_{33}}, \\ \rho_{11} &= \frac{w_{12}w_{13} + \Gamma_{32}w_{12} + \Gamma_{31}(w_{23} + w_{12}) + w_{23}W_{33}}{3w_{13}w_{12} + \Gamma_{32}W_{11} + \Gamma_{31}W_{22} + 3w_{23}W_{33}}, \end{aligned} \quad (\text{A2})$$

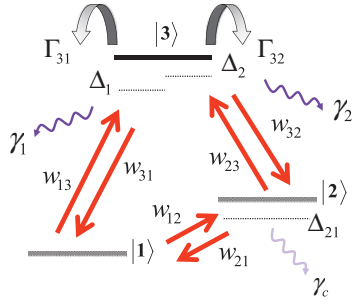


FIG. 16. (Color online) Definition of the w_{ij} transition rates within the three-level Λ configuration.

where the w_{ij} transition rates between each pair of states are defined in Fig. 16, and where

$$\begin{aligned} W_{11} &= w_{13} + 2w_{12}, & W_{22} &= w_{23} + 2w_{12}, \\ W_{33} &= w_{13} + w_{12}. \end{aligned} \quad (\text{A3})$$

The expressions for the two-photon ($w_{12} \propto \Omega_1^2 \Omega_2^2$) and one-photon ($w_{13} \propto \Omega_1^2, w_{23} \propto \Omega_2^2$) transitions rates are

$$\begin{aligned} w_{12} &= 2\text{Re} \left\{ \frac{\Omega_1^2 \Omega_2^2}{\xi_{31} \xi_{21} \xi_{32} + \Omega_1^2 \xi_{31} + \Omega_2^2 \xi_{32}} \right\}, \\ w_{13} &= 2\text{Re} \left\{ \frac{\Omega_1^2}{\xi_{31} + \frac{\Omega_2^2}{\xi_{21} + \frac{\Omega_1^2}{\xi_{32}}}} \right\} - w_{12}, \\ w_{23} &= 2\text{Re} \left\{ \frac{\Omega_2^2}{\xi_{32} + \frac{\Omega_1^2}{\xi_{21} + \frac{\Omega_2^2}{\xi_{31}}}} \right\} - w_{12}. \end{aligned} \quad (\text{A4})$$

The detuning parameters ξ_{ij} are complex numbers depending on the system parameters

$$\begin{aligned} \xi_{31} &= i\Delta_1 + \gamma_1, & \xi_{32} &= -i\Delta_2 + \gamma_2, \\ \xi_{21} &= i\Delta_{21} + \gamma_c = i(\Delta_1 - \Delta_2) + \gamma_c. \end{aligned} \quad (\text{A5})$$

The above expressions of the one- and two-photon rates point out the light-shift contributions to the eigenfrequencies of the three-level Λ system.

APPENDIX B: DARK-RESONANCE FRINGE FREQUENCY SHIFT

A. First order expression of $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$

Equation (35) can be recast in the following form:

$$\rho_{33}(T) = \alpha_{33} + B_{33} \cos(U), \quad (\text{B1})$$

where

$$B_{33} = \mu |\rho_{12}| e^{-\gamma_c T}, \quad \mu = \alpha_{33} \beta_{33}, \quad U = \delta_r T - \Phi_{33}. \quad (\text{B2})$$

To establish the frequency shift, a track of the extremum of Eq. (35) produced by a differentiation versus δ_r leads to the following expression:

$$\text{with } \rho'_{33} = \alpha'_{33} + \sqrt{B_{33}'^2 + B_{33}^2 U'^2} \sin(U + \theta_{33}), \quad (\text{B3})$$

$$\theta_{33} = -\arctan \left(\frac{B_{33}'}{B_{33} U'} \right), \quad \text{if } T - \Phi'_{33} < 0, \quad (\text{B4})$$

$$\theta_{33} = -\arctan \left(\frac{B_{33}'}{B_{33} U'} \right) + \pi, \quad \text{if } T - \Phi'_{33} > 0. \quad (\text{B5})$$

The ρ'_{33} derivative vanishes at

$$U + \theta_{33} + \eta_{33} = 0, \quad (\text{B6})$$

where

$$\eta_{33} = \arcsin \left(\frac{\alpha'_{33}}{\sqrt{B_{33}'^2 + B_{33}^2 U'^2}} \right). \quad (\text{B7})$$

Rewriting the cancellation condition as

$$\delta_r T - \Phi_{33} + \theta_{33} + \eta_{33} = 0, \quad (\text{B8})$$

we apply a first order expansion of Eq. (B8) into the δ_r Raman detuning leading to the following $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ frequency shift:

$$\delta\omega_{33}^{\text{fr}} \equiv \delta_r = \frac{\Phi_{33}(0) - \theta_{33}(0) - \eta_{33}(0)}{T - \Phi'_{33}(0) + \theta'_{33}(0) + \eta'_{33}(0)}. \quad (\text{B9})$$

If we neglect $\theta_{33}(0)$ and $\eta_{33}(0)$ terms, the discrepancy is, respectively, +6% and -13%. If we neglect the $\theta'_{33}(0)$ or the $\eta'_{33}(0)$ term, the error is below +0.4%. Thus at the 1% level of accuracy and at a common mode detuning that is small compared to spontaneous emission rates, we can rewrite the frequency-shift expression as

$$\delta\omega_{33}^{\text{fr}} \approx \frac{\Phi_{33}(0) - \theta_{33}(0) - \eta_{33}(0)}{T - \Phi'_{33}(0)}. \quad (\text{B10})$$

B. Derivative terms

This subsection reports the functions appearing in Eq. (B10) and required to determine the frequency-shift $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ as a function of the common mode detuning Δ_0 and the system parameters. The additional functions may be obtained from the first order derivatives of the μ , Φ_{33} , $|\rho_{12}|$, and α_{33} functions calculated at $\delta_r = 0$. In order to simplify the mathematics, those functions are here reported for the case of a pure radiative process $\gamma_1 = \gamma_2, \tilde{\gamma}_1 = \tilde{\gamma}_2$, and supposing $\Delta_1 = \Delta_2 = \Delta_0$:

$$\Phi_{33}(0) = -\text{Arctan} \left[\frac{\gamma_c \Delta}{\gamma_{\text{eff}}} \right], \quad (\text{B11})$$

$$\mu'(0) = \mu(0) \frac{\Delta_0 (\tilde{\gamma}_1 \Gamma + 3\Omega_1^2 - 3\Omega_2^2)}{\tilde{\gamma}_1 \gamma_1 (\tilde{\gamma}_1 \Gamma + 3\Omega_1^2 + 3\Omega_2^2)}, \quad (\text{B12})$$

$$\begin{aligned}
\alpha'_{33}(0) = & \frac{4\Delta_0\Omega_2^2[\Gamma\tilde{\gamma}_1 + \Delta n(\Gamma\tilde{\gamma}_1 + 6\Omega_1^2)]}{\Gamma\tilde{\gamma}_1[\Gamma\tilde{\gamma}_1 + 3(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)]^2} + \frac{\tilde{\gamma}_1(\Omega_2^2 - \Omega_1^2)}{[\tilde{\gamma}_1^2\Gamma + 3\tilde{\gamma}_1(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)]\Gamma_{\text{eff}}^2} \\
& \times \left\{ \Delta_{11}S^{11} + \Delta_{22}S^{22} - \gamma_c\bar{\Delta}\bar{\gamma}_{22}S^{22} + \gamma_c\Delta_0\frac{2\bar{\Omega}_1^2}{\Gamma}(\bar{\gamma}_{11}S^{11} + \bar{\gamma}_{22}S^{22}) + \Delta n\left(\Delta_f - \frac{8\Delta_0\bar{\Omega}_1^2(\Gamma_{\text{eff}}^2 - \gamma_c^2)}{4\Delta_0^2 + (1+2S)\Gamma^2}\right) \right. \\
& + \frac{4\Delta_0S\bar{\Omega}_1^2}{(1+2S + \frac{4\Delta_0^2}{\Gamma^2})^2\Gamma^2} \left[\gamma_{22}^2\left(2 + \frac{\tilde{\gamma}_1\Gamma_{32}}{\Omega_2^2}\right) - \gamma_{11}^2\left(2 + \frac{\tilde{\gamma}_1\Gamma_{31}}{\Omega_1^2}\right) \right] \\
& \left. - \frac{2\Delta_0\gamma_{22}^2\Gamma_{32}S^\Lambda}{\Gamma\Omega_2^2} + \frac{4\Delta_0\bar{\gamma}_{22}S^{22}\Gamma_{32}(2\Delta_0\bar{\Delta}\gamma_c + \Gamma\gamma_{\text{eff}})}{\Gamma_{32}(4\Delta_0^2 + \Gamma^2) + 4\Gamma\Omega_2^2} \right\}, \tag{B13}
\end{aligned}$$

$$\Phi'_{33}(0) = -\frac{\bar{\Delta}^2\gamma_c(2\gamma_1^2\tilde{\gamma}_1 - 2\Delta_0^2\gamma_c + \gamma_1\tilde{\gamma}_1\gamma_c) + \gamma_{\text{eff}}[2\gamma_1\tilde{\gamma}_1(\gamma_1 + \bar{\Omega}_1^2\gamma_c) - 2\Delta_0^2\gamma_{\text{eff}} + \gamma_1\tilde{\gamma}_1\gamma_{\text{eff}}]}{2\gamma_1^2\tilde{\gamma}_1(\bar{\Delta}^2\gamma_c^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)}, \tag{B14}$$

$$\begin{aligned}
|\rho_{12}|'(0) = |\rho_{12}|(0) & \left(\frac{\Delta_f}{\Gamma_{\text{eff}}^2} - \frac{8\Delta_0\{4\Delta_0^2\gamma_cS + \Gamma[\gamma_{\text{eff}}^2 + 3\gamma_c\gamma_{\text{eff}}S - \gamma_c^2(1+2S)]\}\bar{\Omega}_1^2}{(1+2S + 4\Delta_0^2/\Gamma^2)^2\Gamma^3\Gamma_{\text{eff}}^2} \right. \\
& \left. + \frac{\bar{\Delta}(\gamma_c - \gamma_{\text{eff}} + 2\bar{\Omega}_1^2\gamma_c^2/\Gamma)}{(\bar{\Delta}^2\gamma_c^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)} + \frac{8\Delta_0\bar{\Omega}_1^2}{\Gamma^2(1+2S + 4\Delta_0^2/\Gamma^2)} \right). \tag{B15}
\end{aligned}$$

These perturbative expressions were used to determine the $\delta\omega_{33}^{\text{fr}}$ frequency shift plotted in Fig. 15 when $\Delta_0 \leq \Gamma$.

-
- [1] J. B. M. Kellogg and S. Millman, *Rev. Mod. Phys.* **18**, 323 (1946).
- [2] N. F. Ramsey, *Molecular Beams* (Oxford University Press, Oxford, 1956).
- [3] A. D. Cronin, J. Schmiedmayer, and D. E. Pritchard, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1051 (2009).
- [4] T. Hansch and P. Toschek, *Z. Phys.* **236**, 213 (1970).
- [5] R. G. Brewer and E. L. Hahn, *Phys. Rev. A* **11**, 1641 (1975).
- [6] R. M. Whitley and C. R. Stroud, *Phys. Rev. A* **14**, 1498 (1976).
- [7] E. Arimondo and G. Orriols, *Lett. Nuovo Cimento* **17**, 333 (1976).
- [8] G. Alzetta, A. Gozzini, L. Moi, and G. Orriols, *Nuovo Cimento B* **36**, 5 (1976).
- [9] H. R. Gray, R. M. Whitley, and C. R. Stroud Jr., *Opt. Lett.* **3**, 218 (1978).
- [10] G. Orriols, *Nuovo Cimento B* **53**, 1 (1979).
- [11] V. Shah and J. Kitching, *Adv. At. Mol. Phys.* **59**, 21 (2010).
- [12] I. Siemers, M. Schubert, R. Blatt, W. Neuhauser, and P. E. Toschek, *Euro. Phys. Lett.* **18**, 139 (1992).
- [13] G. Janik, W. Nagourney, and H. Dehmelt, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1251 (1985).
- [14] J. Vanier, *Appl. Phys. B* **81**, 421 (2005).
- [15] P. Treutlein, P. Hommelhoff, T. Steinmetz, T. W. Hansch, and J. Reichel, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 203005 (2004).
- [16] D. M. Farkas, A. Zozulya, and D. Z. Anderson, *Appl. Phys. B* **101**, 701 (2010).
- [17] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. H. Greene, and J. Ye, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 173002 (2005).
- [18] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney, and E. N. Forston, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 050801 (2005).
- [19] C. Champenois, G. Hagel, M. Houssin, M. Knoop, C. Zumsteg, and F. Vedel, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 013001 (2007).
- [20] E. Peik and C. Tamm, *EuroPhys. Lett.* **61**, 181 (2002).
- [21] A. Greulich, R. Oulton, E. A. Zhukov, I. A. Yugova, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. Shabaev, A. L. Efros, I. A. Merkulov, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 227401 (2006).
- [22] Z. Dutton, K. V. R. M. Murali, W. D. Oliver, and T. P. Orlando, *Phys. Rev. B* **73**, 104516 (2006).
- [23] W. R. Kelly, Z. Dutton, J. Schlafer, B. Mookerji, T. A. Ohki, J. S. Kline, and D. P. Pappas, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 163601 (2010).
- [24] M. Santori, C. Tamarat, P. Neumann, J. Wrachtrup, D. Fattal, R. Beausoleil, J. Rabeau, P. Olivero, A. Greentree, S. Prawer, F. Jelezko, and P. Hemmer, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 247401 (2006).
- [25] X. Xu, B. Sun, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, and L. J. Sham, *Nat. Phys.* **4**, 692 (2008).
- [26] M. Issler, E. M. Kessler, G. Giedke, S. Yelin, I. Cirac, M. D. Lukin, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 267202 (2010).
- [27] S. Weis, R. Riviere, S. Delglise, E. Gavartin, O. Arcizet, A. Schliesser, and T. J. Kippenberg, *Science* **330**, 1520 (2010).
- [28] A. H. Safavi-Naeini, T. P. Mayer Alegre, J. Chan, M. Eichenfield, M. Winger, Q. Lin, J. T. Hill, D. E. Chang, and O. Painter, *Nature (London)* **472**, 69 (2011).
- [29] R. Coussement, Y. Rostovtsev, J. Odeurs, G. Neyens, P. Mandel, G. Kozyreff, R. Shakhmuratov, and O. Kocharovskaya, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 107601 (2002).
- [30] T. J. Bürvenich, J. Evers, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 142501 (2006).

- [31] M. J. Mark, J. G. Danzl, E. Haller, M. Gustavsson, N. Bouloufa, O. Dulieu, H. Salami, T. Bergeman, H. Ritsch, R. Hart, and H. C. Nagerl, *Appl. Phys. B* **95**, 219 (2009).
- [32] K. Winkler, G. Thalhammer, M. Theis, H. Ritsch, R. Grimm, and J. H. Denschlag, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 063202 (2005).
- [33] R. Dumke, J. D. Weinstein, M. Johanning, K. M. Jones, and P. D. Lett, *Phys. Rev. A* **72**, 041801(R) (2005).
- [34] S. Moal, M. Portier, J. Kim, J. Dugue, U. D. Rapol, M. Leduc, and C. Cohen-Tannoudji, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 023203 (2006).
- [35] S. Moal, M. Portier, N. Zahzam, and M. Leduc, *Phys. Rev. A* **75**, 033415 (2007).
- [36] B. Lounis and C. Cohen-Tannoudji, *J. Phys. II* **2**, 579 (1992).
- [37] Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy, and P. E. Toschek, *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 2505 (1998).
- [38] S. H. Autler and C. H. Townes, *Phys. Rev.* **100**, 703 (1955).
- [39] U. Fano, *Phys. Rev.* **124**, 1866 (1961); H. Feshbach, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 1076 (1964).
- [40] E. Arimondo, *Prog. Opt.* **35**, 257 (1996).
- [41] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1107 (1990).
- [42] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 633 (2005).
- [43] S. Swain, *J. Phys. B* **13**, 2375 (1980).
- [44] S. Swain, *J. Phys. B* **15**, 3405 (1982).
- [45] P. L. Kelley, P. J. Harshman, O. Blum, and T. K. Gustafson, *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 2298 (1994).
- [46] R. Wynands and A. Nagel, *Appl. Phys. B* **68**, 1 (1999).
- [47] H. Lee, Y. Rostovtsev, C. J. Bednar, and A. Javan, *Appl. Phys. B* **76**, 33 (2003).
- [48] M. J. McDonnell, D. N. Stacey, and A. M. Steane, *Phys. Rev. A* **70**, 053802 (2004).
- [49] T. Zanon-Willette, Ph.D. thesis, LNE-SYRTE and UPMC, 2005, [<http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00123499>].
- [50] T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 193002 (2005).
- [51] T. Zanon, S. Tremine, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon, *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **54**, 776 (2005).
- [52] Xi Chen, G.-Q. Yang, J. Wang, and M.-S. Zhan, *Chin. Phys. Lett.* **27**, 113201 (2010).
- [53] J. E. Thomas, P. R. Hemmer, S. Ezekiel, C. C. Leiby Jr., R. H. Picard, and C. R. Willis, *Phys. Rev. Lett.* **48**, 867 (1982).
- [54] T. Zanon-Willette, A. D. Ludlow, S. Blatt, M. M. Boyd, E. Arimondo, and J. Ye, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 233001 (2006).
- [55] T. H. Yoon, *Phys. Rev. A* **76**, 013422 (2007).
- [56] V. I. Yudin, A. V. Taichenachev, C. W. Oates, Z. W. Barber, N. D. Lemke, A. D. Ludlow, U. Sterr, Ch. Lisdat, and F. Riehle, *Phys. Rev. A* **82**, 011804 (2010).
- [57] P. R. Hemmer, M. S. Shahriar, V. D. Natoli, and S. Ezekiel, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 1519 (1989).
- [58] S. M. Shahriar, P. R. Hemmer, D. P. Katz, A. Lee, and M. G. Prentiss, *Phys. Rev. A* **55**, 2272 (1997).
- [59] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions* (Wiley, New York, 1998).
- [60] E. T. Jaynes, *Phys. Rev.* **98**, 1099 (1955).
- [61] H. C. Torrey, *Phys. Rev.* **76**, 1059 (1949).
- [62] A. Abragam, *Principles of Nuclear Magnetism*, (Clarendon, Oxford, 1961); R. L. Schoemaker, in *Laser Coherence Spectroscopy*, edited by J. I. Steinfeld (Plenum, New York, 1978), p. 197.
- [63] All quantities with an overbar are dimensionless.
- [64] O. Kocharovskaya and P. Mandel, *Phys. Rev. A* **42**, 523 (1990).
- [65] As mentioned in [37], in [5, 10] the Δ_{LS} Raman frequency shift was erroneously associated to the shift of the Raman peak.
- [66] There is no internal shift of the EIT resonance when $\gamma_c = 0$ except if light shift produced by additional levels external to the Λ system is introduced into the Raman detuning [17, 54].
- [67] E. De Clercq and P. Cerez, *Opt. Com.* **45**, 91 (1983).
- [68] M. Fleischhauer and M. O. Scully, *Phys. Rev. A* **49**, 1973 (1994).
- [69] A. G. Kofman, *Phys. Rev. A* **56**, 2280 (1997).
- [70] H. R. Schlossberg and A. Javan, *Phys. Rev.* **150**, 267 (1966).
- [71] H. R. Schlossberg and A. Javan, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1242 (1966).
- [72] I. V. Jyotsna and G. S. Agarwal, *Phys. Rev. A* **52**, 3147 (1995).
- [73] J. Vanier, A. Godone, and F. Levi, *Phys. Rev. A* **58**, 2345 (1998).
- [74] J. Zhang and J. Chen, *Proceedings Frequency Control Symposium, 2007 Joint with the 21st European Frequency and Time Forum* (IEEE International, Geneva, 2007), p. 49.
- [75] W. Wu and S. Peng, *Chin. J. Electron.* **19**, 229 (2010).
- [76] A. Derevianko and H. Katori, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 331 (2011).
- [77] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 281 (2003).
- [78] B. J. Dalton, T. D. Kieu, and P. L. Knight, *Opt. Acta.* **33**, 459 (1986).
- [79] L. M. K. Vandersypen and I. L. Chuang, *Rev. Mod. Phys.* **76**, 1037 (2005).
- [80] C. J. Bordé, in *Atom Interferometry*, edited by P. Berman (Academic, San Diego, 1997), p. 257.
- [81] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste, and C. Cohen-Tannoudji, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2112 (1989).

2.4.2 [Phys. Rev. Lett. 97, 233001 \(2006\)](#)

Cancellation of Stark Shifts in Optical Lattice Clocks by Use of Pulsed Raman and Electromagnetically Induced Transparency Techniques

Thomas Zanon-Willette, Andrew D. Ludlow, Sebastian Blatt, Martin M. Boyd, Ennio Arimondo,* and Jun Ye
JILA, National Institute of Standards and Technology and University of Colorado, Department of Physics, University of Colorado,
Boulder, Colorado 80309-0440, USA

(Received 16 June 2006; published 7 December 2006)

We propose a combination of electromagnetically induced transparency–Raman and pulsed spectroscopy techniques to accurately cancel frequency shifts arising from electromagnetically induced transparency fields in forbidden optical clock transitions of alkaline earth atoms. At appropriate detunings, time-separated laser pulses are designed to trap atoms in coherent superpositions while eliminating off-resonance ac Stark contributions, achieving efficient population transfer up to 60% with inaccuracy $<10^{-17}$. Results from the wave-function formalism are confirmed by the density matrix approach.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.233001

PACS numbers: 32.80.-t, 32.70.Jz, 42.50.Gy, 42.62.Eh

In the field of optical frequency standards and clocks, single trapped ions [1] and alkaline earth atoms [2–6] are advancing clock performances. The advantage arises from superhigh resonance quality factors of these optical transitions [7], which are expected to be 10^5 better than microwave fountains. These fountain clocks are already below the 10^{-15} relative fractional uncertainty [8]. Fermionic isotopes of alkaline earths trapped in optical lattices at the magic wavelength [9] offer ultranarrow linewidths of a few millihertz without recoil and Doppler effects, but remain potentially sensitive to systematic effects arising from the nuclear spin-related tensor polarizability [3–5]. On the other hand, bosonic isotopes with no nuclear spin and a higher natural isotopic abundance avoid multiple hyperfine components but lack direct excitation of the clock transition $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ in Fig. 1(a). Indirect excitation via continuous-wave electromagnetically induced transparency (EIT) has been proposed to probe these forbidden transitions [10,11]. A similar scheme for the ^{174}Yb forbidden clock transition was implemented by applying a dc magnetic field for state mixing [6].

All such schemes can suffer from Stark shifts due to nonresonant electric-dipole couplings of the clock levels to other states induced by the applied electromagnetic fields [12,13]. Reference [10] provides some detailed calculations of these shifts. To further reduce this potential systematic error, we could apply an approach similar to that used for the determination of the magic wavelength [3,4] or the hyperpolarizability contribution to the ac Stark shifts [14]: Measurements at different field strengths are used to extrapolate the clock frequency to vanishing field. However, this simple approach does not apply to the EIT-related schemes where the applied field strength modifies also the optical pumping time required to prepare the atoms in a coherent superposition [15]. The preparation time required for optimal signal contrast and clock stability becomes impractically long at low field strengths. But using large fields increases the ac Stark shifts and limits the clock accuracy. To overcome these limits, the pulsed

scheme proposed in this Letter [Fig. 1(c)] optimizes clock performance by using time-separated laser pulses to prepare and interrogate the optical clock transition [16]. It is an original mix of Ramsey spectroscopy and highly efficient population transfer under coherent population trapping (CPT) [17]. The first pulse prepares atoms in a coherent superposition and the second pulse probes the clock frequency. This configuration produces a large contrast in the detected clock signal. More importantly, as the detunings of the applied fields affect the phase evolution of the atomic wave-function, a proper combination of the common mode laser detuning Δ_0 and pulse durations τ , τ_m (Fig. 1) reduces the clock shift to $\sim 10^{-17}$. The discussion presented here reveals for the first time a general relation connecting the preparation time of the Raman

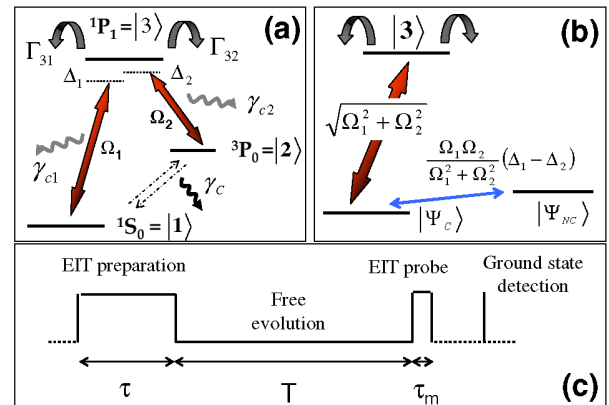


FIG. 1 (color online). (a) Three-level atom-light configuration for an optical lattice clock based on time-separated laser pulses including relaxation and decoherence rates. The optical detunings $\Delta_1 \equiv \Delta_0 + \eta_1$, $\Delta_2 \equiv \Delta_0 - \delta_r + \eta_2$ include ac Stark shifts η_i from off-resonant levels. Here Δ_0 is the common mode detuning and δ_r denotes deviation from the Raman condition. (b) The corresponding dressed-state representation of bright $|\Psi_C\rangle$ and dark $|\Psi_{NC}\rangle$ states defining the clock transition. (c) The probing pulse sequence.

coherence and the signal contrast in the subsequent detection of this coherence, relevant to many EIT or CPT related experiments.

The atomic evolution between 1S_0 and 3P_0 is properly described in the dressed-state picture [Fig. 1(b)],

$$\begin{aligned} |1\rangle &= \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_C\rangle + \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_{NC}\rangle, \\ |2\rangle &= \frac{\Omega_2}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_C\rangle - \frac{\Omega_1}{\sqrt{\Omega_2^2 + \Omega_1^2}} |\Psi_{NC}\rangle, \end{aligned} \quad (1)$$

where Ω_1 and Ω_2 are the Rabi frequencies for the transitions $^1S_0 \leftrightarrow ^1P_1$ and $^3P_0 \leftrightarrow ^1P_1$. For an ideal 3-level system described in Eq. (1), the dark state $|\Psi_{NC}\rangle$ remains insensitive to light shift, while the bright state $|\Psi_C\rangle$ is always coupled to the laser light. A realistic atomic clock has to deal with off-resonant ac Stark shifts acting on $|\Psi_C\rangle$ while atoms are pumped into $|\Psi_{NC}\rangle$ with a few spontaneous emission cycles. Thus, a judicious tradeoff between the short-time dynamics for a high-contrast signal (large optical pumping) and the reduced external ac shifts (and resonance power broadenings) under a low field strength needs to be found for practical realizations of these EIT or Raman-type clocks.

To describe our pulsed method, we start from a three-level configuration as shown in Fig. 1(a). The optical Bloch equations (OBEs) describe three-level dynamics including external shifts, relaxations, and decoherences between atomic states [18] in terms of the density matrix:

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \mathcal{R}\rho. \quad (2)$$

In the interaction picture, the atom-light Hamiltonian H and relaxation matrix $\mathcal{R}\rho$ become

$$\begin{aligned} \frac{H}{\hbar} &= \begin{pmatrix} \Delta_1 & 0 & \Omega_1 \\ 0 & \Delta_2 & \Omega_2 \\ \Omega_1 & \Omega_2 & 0 \end{pmatrix}; \\ \mathcal{R}\rho &= \begin{pmatrix} \Gamma_{31}\rho_{33} & -\gamma_c\rho_{12} & -\gamma_{c1}\rho_{13} \\ -\gamma_c\rho_{21} & \Gamma_{32}\rho_{33} & -\gamma_{c2}\rho_{23} \\ -\gamma_{c1}\rho_{31} & -\gamma_{c2}\rho_{32} & -\Gamma\rho_{33} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (3)$$

The relaxation matrix includes the spontaneous emission rates $\Gamma = \Gamma_{31} + \Gamma_{32}$, optical decoherences γ_{c1} , γ_{c2} , and the Raman decoherence γ_c [see Fig. 1(a)]. Electric and/or magnetic dipole couplings determine the Rabi frequencies Ω_i ($i = 1, 2$). Equation (2) describes the dynamics of a closed Λ system where optical detunings Δ_i include ac Stark shifts η_i from nonresonant electric-dipole couplings of $|1\rangle$ and $|2\rangle$ to other states. For $\Omega_1, \Omega_2 \lesssim \Gamma_{31}, \Gamma_{32}$, γ_{c1} , γ_{c2} , the population in state $|3\rangle$ is slaved to the population difference $\Delta n(t) \equiv \rho_{22}(t) - \rho_{11}(t)$ and Raman coherence $\rho_{12}(t)$. This allows finding analytical solutions to Eq. (2) by adiabatic elimination of the intermediate state $|3\rangle$ [19,20].

The reduced two-level system dynamics are described by a Bloch-vector representation [21,22].

To remove ac Stark shifts while maintaining a high signal contrast, we apply the Ramsey technique for EIT or Raman fields to this effective two-level system, minimizing systematic frequency shifts over the free-evolution time T . The Ramsey-like sequence of preparation, free-evolution, and probe, followed by the final destructive detection of the ground-state population, is indicated in Fig. 1(c). This eliminates power broadening of the clock transition which is always present for continuous excitation [23]. By solving for the two-level system as in [22] we can express the populations as

$$\begin{aligned} \rho_{ii} &\equiv \alpha_{ii}(\tau, \tau_m) \{1 + \beta_{ii}(\tau, \tau_m) e^{-\gamma_c T} \\ &\times \cos[\delta_r T - \Phi(\tau, \tau_m)]\}, \end{aligned} \quad (4)$$

where $\alpha_{ii}(\tau, \tau_m)$ is the overall envelope function and $\beta_{ii}(\tau, \tau_m)$ is the amplitude of fringes, both containing exponential decays $e^{-\tau/\tau_p}$ and $e^{-\tau_m/\tau_p}$ to their steady states [21]. τ_p is the characteristic optical pumping time. The atomic phase shift Φ produces an approximated clock frequency shift assuming $\tau, \tau_m \lesssim T$:

$$\delta\nu = \frac{\Phi(\tau, \tau_m)}{2\pi T(1 + \frac{\tau + \tau_m}{2T})}, \quad (5)$$

which includes all ac Stark contributions accumulated during the pulsed interactions. Hence, a longer free-evolution time T reduces the light shifts on the clock transition. Furthermore, as will be shown below, a special value $(\Delta_0)_m$ of the common detuning Δ_0 can be found to suppress ac Stark effects on the clock frequency. Study of the population dynamics from Eq. (4) leads to an expression for the time τ_p that is required to pump atoms into their final steady state, simplified for $\Delta_0 \simeq \Delta_1 \simeq \Delta_2$:

$$\tau_p(\Delta_0) \approx \frac{2}{\Gamma} \frac{\Delta_0^2 + \Gamma^2/4}{(\Omega_1^2 + \Omega_2^2)} \left[1 - Y \left(\frac{\Omega_1^2 - \Omega_2^2}{\Omega_1^2 + \Omega_2^2} \right) \right]^{-1}. \quad (6)$$

Here $Y = (\Gamma_{31} - \Gamma_{32})/\Gamma$ is the branching ratio difference for the intermediate state which scales the contribution of each Rabi frequency to the pumping rate τ_p^{-1} . This time scale τ_p sets the EIT or CPT response in either transient or steady states. Previous work on EIT or CPT concentrates mainly on the symmetric case with $Y = 0$. But in the case of alkaline earths where $Y \sim \pm 1$, Eq. (6) shows that the Rabi frequency associated with the weaker transition dictates τ_p . For the ^{88}Sr lattice clock where $\Gamma_{31} = 2\pi \times 32 \text{ MHz} \gg \Gamma_{32} = 2\pi \times 620 \text{ Hz}$ (i.e., $Y \sim 1$), the pumping time at resonance $\tau_p(0)$ is determined by the magnetic dipole coupling Ω_2 between 3P_0 and 1P_1 . Figure 2 shows the dependence of $\tau_p(0)$ on each Rabi frequency while keeping the other one fixed. The dotted lines are the corresponding differential ac Stark shift of the clock frequency in the steady state regime. Note that small ac Stark shifts correspond to long optical pumping times conflicting with realistic clock duty cycles. For instance, the proposal by [10] with ac Stark shift below 21.7 mHz for

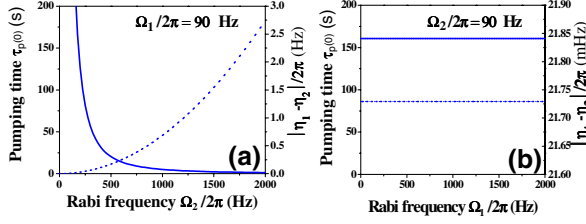


FIG. 2 (color online). Differential ac Stark shifts $\eta_1 - \eta_2$ (dashed curves) on the $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$ clock frequency and the optical pumping time $\tau_p(\Delta_0 = 0)$ (solid curves) using Eq. (6) vs either (a) magnetic Rabi frequency Ω_2 or (b) electric Rabi frequency Ω_1 .

an accuracy of 2×10^{-17} leads to a signal contrast of a few percent only after 160 s. The scheme presented here finds a combination of parameters that maximizes contrast while suppressing ac Stark shifts, exploiting the transient dynamics for short pulses and detuned laser fields. The highly asymmetric Y allows this scheme to uniquely exploit ground-state detection with a high-contrast narrow resonance manifested in the atomic population transfer. In the region of detuning between Raman spectroscopy ($\Delta_0/\Gamma \gg 1$) and EIT/CPT ($\Delta_0/\Gamma \ll 1$), we find contrasts of up to 60%, even though $\tau \ll \tau_p(\Delta_0) \simeq 100$ s. This same approach could be extended easily to the four level scheme [11], the magnetic induced optical transition [6] or any other clock configurations involving dark states.

The small difference between the field-free clock detuning δ_r and the ac Stark shifted detuning $\Delta_1 - \Delta_2 = (\eta_1 - \eta_2) + \delta_r$ under laser fields leads to a small phase shift of the Ramsey-EIT fringe defined by $\Phi(\tau, \tau_m)$ in Eq. (5) [19,20]. Solving Eq. (2) numerically, we find that a judicious choice of the laser detuning $(\Delta_0)_m$ cancels the external ac Stark shifts, minimizing the influence to the clock transition when high field strengths are used to rapidly drive EIT resonances. To confirm these results, we also establish an analytical expression for $\Phi(\tau, \tau_m)$ based on the atomic wave-function formalism [24], using the Hamiltonian of Eq. (3) adding only the term $-i\Gamma/2$ associated with spontaneous relaxation [25,26] and neglecting all lattice decoherences. By adiabatic elimination of state $|3\rangle$, within an effective two-level system including only the clock states $|1\rangle$ and $|2\rangle$, the amplitudes evolve with a matrix M , generalized from Ref. [27] by assuming $\Delta_1 \neq \Delta_2$:

$$M = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) + i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega}\sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega}\sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \\ 2i\frac{\Omega_{\text{eff}}}{\omega}\sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) & \cos\left(\frac{\omega}{2}t\right) - i\frac{\Delta_{\text{eff}}}{\omega}\sin\left(\frac{\omega}{2}t\right) \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} M_+ & M_\dagger \\ M_\dagger & M_- \end{pmatrix}, \quad (7)$$

where $\omega = (\Delta_{\text{eff}}^2 + 4\Omega_{\text{eff}}^2)^{1/2}$ and Δ_{eff} (Ω_{eff}) is the complex detuning (Rabi frequency) in the effective two-level system, extending the definitions of [28]:

$$\Delta_{\text{eff}} = \Omega_1^2 \frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} - \Omega_2^2 \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} - (\Delta_1 - \Delta_2),$$

$$\Omega_{\text{eff}} = \Omega_1 \Omega_2 \left(\frac{\Delta_1 + i\Gamma/2}{\Delta_1^2 + \Gamma^2/4} \frac{\Delta_2 + i\Gamma/2}{\Delta_2^2 + \Gamma^2/4} \right)^{1/2}. \quad (8)$$

The atomic phase depends not only on the wave-function coefficients of the atomic evolution but also on the steady states included in the closed density matrix equations [29]. However, when short pulses $\tau, \tau_m \ll \tau_p(\Delta_0)$ are applied, stationary solutions can be ignored. For initial conditions $\rho_{11}(0) = 1, \rho_{22}(0) = 0$, we find an expression for the atomic phase related to the clock frequency shift:

$$\Phi(\tau, \tau_m) \sim \arg \left[\frac{M_-(\tau_m)}{M_+(\tau_m)} \frac{M_+(\tau)}{M_-(\tau)} \right]. \quad (9)$$

We are able to find values of $(\Delta_0)_m$ where the clock shift is suppressed for different practical choices of Rabi frequencies Ω_i . Figure 3(a) plots the clock frequency shift $[\delta\nu]$ as defined in Eq. (5) versus Δ_0 under three different cases of $\tau = \tau_m$, with $T = 1$ s and $\Omega_1/\Omega_2 = 8$. The dots show numerical results from Eq. (2) and solid curves are analytical results from Eq. (9). Here, we find a nonvanishing $\delta\nu$ under all conditions. However, as the ratio of Ω_1/Ω_2 increases, we do find both approaches give the same value

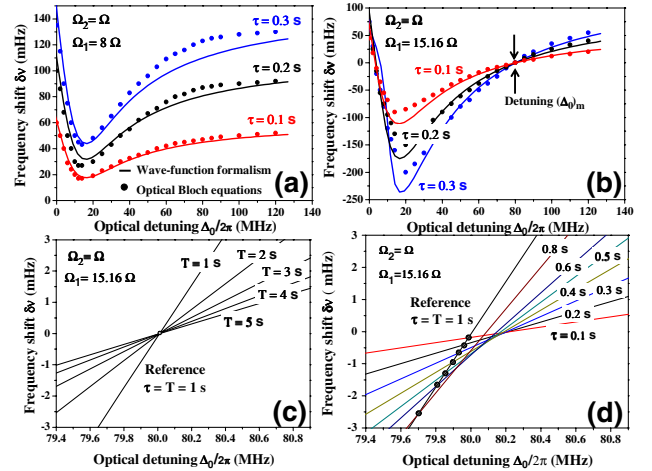


FIG. 3 (color online). Time diluted frequency shift [Eqs. (5) and (9)] arising from off-resonance ac Stark shift contributions to the $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$ transition under different optical detunings Δ_0 . (a) Three different cases of pulse durations $\tau = \tau_m$ are shown, under $T = 1$ s and $\Omega_1/\Omega_2 = 8$. Numerical calculations based on Eq. (2) (solid dots) agree with analytical results from the wave-function formalism. The pumping time at resonance is $\tau_p(0) = 5$ s and the common Rabi frequency is $\Omega = \sqrt{\Gamma/4\tau_p(0)}$. (b) Same as (a) except $\Omega_1/\Omega_2 = 15.16$, showing Stark shift cancellation near $(\Delta_0)_m = 80$ MHz. (c) A zoomed-in plot of $\delta\nu$ versus Δ_0 , with the slope reduced for a longer T . The location of the common crossing point is $(\Delta_0)_m$. (d) $\delta\nu$ under different τ around $(\Delta_0)_m$. The crossings (shown as solid dots) between lines indicate that the same $\delta\nu$ is obtained for different values of τ .

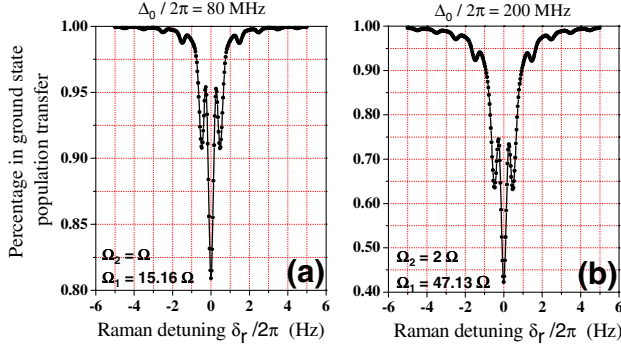


FIG. 4 (color online). Theoretical EIT or Raman line shapes using Eq. (4) for the clock transition $^1S_0 \leftrightarrow ^3P_0$ and a free-evolution time $T = 1$ s. (a) Population transfer of 20% under $\tau_p(80 \text{ MHz}) = 135$ s and (b) population transfer of nearly 60% under $\tau_p(200 \text{ MHz}) = 200$ s. The actual pulse durations are $\tau = \tau_m = 1$ s.

of $(\Delta_0)_m$ where clock shift is suppressed, as indicated in Fig. 3(b). When different free-evolution times (T) or pulse durations ($\tau = \tau_m$) are used, the accumulated phase shift changes, leading to variations in the dependence of $\delta\nu$ on Δ_0 , as shown in the expanded view of Figs. 3(c) and 3(d). To determine the optimum value of $(\Delta_0)_m$ for a practical clock realization at $\tau = 1$ s, we can use two different techniques. First [Fig. 3(c)], extending T reduces the sensitivity of $\delta\nu$ on Δ_0 . Hence, the curves depicting $\delta\nu$ versus Δ_0 for different T rotate around $(\Delta_0)_m$, with no changes in the signal contrast. In the second approach [Fig. 3(d)], we find the values of Δ_0 where $\delta\nu$ for $\tau = 1$ s is the same as that for some other values of τ (< 1 s). These values of Δ_0 can be plotted as a function of τ and extrapolated to $\tau = 0$ to find $(\Delta_0)_m$. However, the signal contrast under smaller τ is reduced due to the effect of pulse preparation on population transfer.

From Eq. (4) we find spectral line shapes and transition probabilities as a function of the experimental parameter δ_r , shown in Fig. 4(a). Since $\tau \ll \tau_p(\Delta_0)$, the two-photon resonance has a Fourier transform linewidth given by the duration τ where power broadening effects have been eliminated. The spectra also exhibit the typical coherent Ramsey nutations with period $\sim 1/2T$ and a central fringe free from systematic shifts. We have also determined the sensitivity of $\delta\nu$ to laser intensities (Ω_i) and detunings, demonstrating that the uncertainty of the optical clock frequency < 5 mHz ($\sim 10^{-17}$) is achievable by controlling Δ_0 at the 100 kHz level around $(\Delta_0)_m$. Meanwhile, Ω_i fluctuations should be controlled $< 0.5\%$. We note that for a given set of τ and Ω_i , different values of $(\Delta_0)_m$ can be found. For example, $(\Delta_0)_m = 200$ MHz is another optimum value for larger Ω_i [Fig. 4(b)]. In this case, the signal contrast is further improved with a population transfer of up to 60%, leading to enhanced clock stability but also slightly larger uncertainty.

In summary, our method achieves the 10^{-17} accuracy expected for a “light-insensitive” lattice clock with pulsed

EIT or Raman techniques. A signal contrast of 20% to 60% (Fig. 4) can be achieved, including realistic lattice decoherence times [4]. Extensions are possible to the proposal of [11] by replacing the 1P_1 state with 3P_1 , to magnetic field induced optical transitions [6], for other species such as ^{52}Cr [30], and for nuclear clock transitions [31].

We thank J. Dalibard, T. Ido, T. Zelevinsky, and C. Oates for discussions. This work is supported by ONR, NIST, and NSF. T. Z-W. thanks Observatoire de Paris and Délégation Générale de l’Armement for support.

*Present address: Laser Cooling and Trapping Group, NIST, Gaithersburg, MD 20899, USA.

Permanent address: Dipartimento di Fisica, Università di Pisa, Italy.

- [1] P.O. Schmidt *et al.*, Science **309**, 749 (2005); H.S. Margolis *et al.*, Science **306**, 1355 (2004); T. Schneider, E. Peik, and C. Tamm, Phys. Rev. Lett. **94**, 230801 (2005); P. Dube *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 033001 (2005).
- [2] U. Sterr *et al.*, C.R. Physique **5**, 845 (2004); F. Ruschewitz *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 3173 (1998); T. Ido *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 153001 (2005).
- [3] M. Takamoto *et al.*, Nature (London) **435**, 321 (2005).
- [4] A. Ludlow *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 033003 (2006).
- [5] R. Le Targat *et al.*, Phys. Rev. Lett. **97**, 130801 (2006).
- [6] Z. W. Barber *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 083002 (2006).
- [7] M. M. Boyd *et al.*, Science **314**, 1430 (2006).
- [8] S. Bize *et al.*, J. Phys. B **38**, S449 (2005); T. P. Heavner *et al.*, Metrologia **42**, 411 (2005).
- [9] H. Katori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 173005 (2003).
- [10] R. Santra *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 173002 (2005).
- [11] T. Hong *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 050801 (2005).
- [12] H. Häffner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 143602 (2003).
- [13] J. A. Sherman *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 243001 (2005).
- [14] A. Brusch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 103003 (2006).
- [15] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, and J. P. Marangos, Rev. Mod. Phys. **77**, 633 (2005).
- [16] P. Knight, Nature (London) **297**, 16 (1982).
- [17] E. Arimondo, Prog. Opt. **35**, 257 (1996).
- [18] R. Santra, K. V. Christ, and C. H. Greene, Phys. Rev. A **69**, 042510 (2004).
- [19] P. R. Hemmer *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 1519 (1989).
- [20] S. M. Shahriar *et al.*, Phys. Rev. A **55**, 2272 (1997).
- [21] E. T. Jaynes, Phys. Rev. **98**, 1099 (1955).
- [22] R. L. Schoemaker, in *Laser and Coherence Spectroscopy*, edited by J. I. Steinfeld (Plenum Press, New York, 1978), p. 197.
- [23] T. Zanon *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 193002 (2005).
- [24] J. Dalibard, Y. Castin, and K. Mølmer, Phys. Rev. Lett. **68**, 580 (1992).
- [25] P. M. Radmore and P. L. Knight, J. Phys. B **15**, 561 (1982).
- [26] Y. Stalgies *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **15**, 2505 (1998).
- [27] T. Zanon *et al.*, IEEE Trans. Instrum. Meas. **54**, 776 (2005).
- [28] K. Moler, D. S. Weiss, M. Kasevich, and S. Chu, Phys. Rev. A **45**, 342 (1992).
- [29] G. Orriols, Nuovo Cimento B **53**, 1 (1979).
- [30] A. S. Bell *et al.*, Europhys. Lett. **45**, 156 (1999).
- [31] E. Peik and C. Tamm, Europhys. Lett. **61**, 181 (2003).

Bibliographie

- [1] J.R. Williams S.L. Campbell M. Bishof X. Zhang W. Zhang S. L. Bromley B.J. Bloom, T.L. Nicholson and J. Ye. [An optical lattice clock with accuracy and stability at the \$10^{-18}\$ level.](#) *Nature.*, 506 :71, 2014.
- [2] C.W. Chou T.M. Fortier S.A. Diddams D.R. Leibbrandt, M.J. Thorpe and Till P. Rosenband. [Absolute and relative stability of an optical frequency reference based on spectral hole burning in \$\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5\$.](#) *Phys. Rev. Lett.*, 111 :237402, 2013.
- [3] N.F. Ramsey. [A Molecular Beam Resonance Method with Separated Oscillating Fields.](#) *Phys. Rev.*, 78 :695, 1950.
- [4] P. Kusch I. I. Rabi, S. Millman and J. R. Zacharias. [The Molecular Beam Resonance Method for Measuring Nuclear Magnetic Moments. The Magnetic Moments of \$^3\text{Li}^6\$, \$^3\text{Li}^7\$ and \$^9\text{F}^{19}\$.](#) *Phys. Rev.*, 55 :526, 1939.
- [5] E.T Jaynes. [Matrix treatment of nuclear induction.](#) *Phys. Rev.*, 98 :1099, 1955.
- [6] R.P. Feynman, F.L. Vernon and R.W. Hellwarth. [Geometrical representation of the Schrödinger equation for solving maser problems.](#) *J. Appl. Phys.*, 28 :49, 1957.
- [7] M. Glass-Maujean and H. Henry Stroke. [Rotating coordinates and the Ramsey separated oscillating-field resonance method.](#) *Am. J. Phys.*, 59 :886, 1991.
- [8] J.I. Steinfeld. [Laser and coherence spectroscopy.](#) Plenum Press, New York, 1978.
- [9] C.J Bordé, Ch. Salomon, S. Avrillier, A. van Lerberghe, Ch. Bréant, D. Bassi and G. Scoles. [Optical Ramsey fringes with traveling waves.](#) *Phys. Rev. A.*, 30 :1836, 1984.
- [10] C.J Bordé. [Atomic interferometry with internal state labelling.](#) *Phys. Lett. A.*, 140 :10, 1989.
- [11] N.F. Ramsey and H.B. Silsbee. [Phase shifts in the molecular beam method of separated oscillating fields.](#) *Phys. Rev.*, 84 :506, 1951.
- [12] B. Cagnac and J-P. Faroux. [Lasers. Interaction lumière-atomes.](#) EDP Sciences.
- [13] V.I. Yudin, A.V. Taichenachev C.W. Oates, Z.W. Barber, N.D. Lemke, A.D. Ludlow, U. Sterr, Ch. Lisdat and F. Riehle. [Hyper Ramsey spectroscopy of optical clock transitions.](#) *Phys. Rev. A.*, 82 :011804(R), 2010.
- [14] N. Huntemann, B. Lipphardt, M. Okhapkin, Chr. Tamm, E. Peik, A.V. Taichenachev and V. I. Yudin. [Generalized Ramsey Excitation Scheme with Suppressed Light Shift.](#) *Phys. Rev. Lett.*, 109 :213002, 2012.
- [15] L. Moi G. Alzetta, A. Gozzini and G. Orriols. [An experimental method for the observation of r.f. transitions and laser beat resonances in oriented Na vapour.](#) *Nuovo. Cimento.*, 36B :5, 1976.
- [16] E. Arimondo and G. Orriols. [Nonabsorbing atomic coherences by coherent two-photon transitions in a three-level optical pumping.](#) *Nuovo. Cimento.*, 17 :333, 1976.

- [17] G. Orriols. [Nonabsorption resonances by non linear coherent effects in a three-level system.](#) *Il Nuovo Cimento B.*, 53 :1, 1979.
- [18] H.R. Gray, R.M. Whitley and C.R. Stroud. [Coherent trapping of atomic population.](#) *Opt. Lett.*, 3 :218, 1978.
- [19] E. Arimondo. [Coherent population trapping in laser spectroscopy.](#) *Progress in optics. edited by E. Wolf/ Elsevier Science*, volXXXV :257, 1996.
- [20] P.L. Knight, M.A. Lauder, P.M. Radmore. [Making atoms transparent - trapped superpositions.](#) *Acta Physica Austriaca*, 56 :103, 1984.
- [21] B. Lounis and C. Cohen-Tannoudji. [Coherent population trapping and Fano profiles.](#) *J. Phys. II.*, 2 :579, 1992.
- [22] J. Dalibard and S. Reynaud and C. Cohen-Tannoudji. [La cascade radiative de l'atome habillé.](#) dans *Vol in honour of A. Gozzini ETS Editrice/Pisa*, 1995.
- [23] J. Vanier. [Atomic clocks based on coherent population trapping : a review.](#) *Appl. Phys. B.*, 81 :421, 2005.
- [24] K.-J. Boller, A. Imamoglu and S. E. Harris. [Observation of electromagnetically induced transparency.](#) *Phys. Rev. Lett.*, 66 :2593, 1991.
- [25] S. Harris. [Electromagnetically Induced Transparency.](#) *Physics Today*, 50 :36, 1997.
- [26] M. Fleischhauer, A. Imamoglu and J.P. Marangos. [Electromagnetically induced transparency : optics in coherent media.](#) *Rev. Mod. Phys.*, 77 :633, 2005.
- [27] M.S. Shahriar, P.R. Hemmer, D.P. Katz, A. Lee and M. G. Prentiss. [Dark-state-based three-element vector model for the stimulated Raman interaction.](#) *Phys. Rev. A.*, 55 :2272, 1997.
- [28] T. Zanon-Willette. *DÉVELOPPEMENT D'UNE HORLOGE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION. ÉTUDE THÉORIQUE ET EXPÉRIMENTALE DU RÉGIME IMPULSIONNEL ET CONTINU.* Thèse de doctorat de l'Université UPMC, 2005.
- [29] R.H. Dicke. [The effect of collisions upon the Doppler width of spectral lines.](#) *Phys. Rev.*, 89 :472, 1953.
- [30] T. Zanon, S. Guerandel, E. de Clercq, D. Holleville, N. Dimarcq, and A. Clairon. [High contrast ramsey fringes with coherent-population-trapping pulses in a double lambda atomic system.](#) *Phys. Rev. Lett.*, 94 :193002, 2005.
- [31] A. Derevianko and H. Katori. [Colloquium : Physics of optical lattice clocks.](#) *Rev. Mod. Phys.*, 83 :331, 2011.
- [32] A. Landragin. *INTERFEROMÉTRIE ATOMIQUE : APPLICATION AUX CAPTEURS INERTIELS.* Habilitation à diriger des recherches de l'Université UPMC, 2009.
- [33] K. Moler, D.S. Weiss, M. Kasevich and S. Chu. [Theoretical analysis of velocity-selective Raman transitions.](#) *Phys. Rev. A.*, 45 :342, 1992.

- [34] A. Aspect, E. Arimondo, R. Kaiser, N. Vansteenkiste and C. Cohen-Tannoudji. [Laser cooling below the one-photon recoil energy by velocity-selective coherent population trapping : theoretical analysis](#). *J. opt. Soc. Am. B.*, 6 :2112, 1989.
- [35] T. Hansch and P. Toschek. [Theory of a Three-level Gas Laser Amplifier](#). *Z. Physik.*, 236 :213, 1970.
- [36] G. Janik, W. Nagourney and H. Dehmelt. [Doppler-free optical spectroscopy on the \$Ba^+\$ mono-ion oscillator](#). *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2 :1251, 1985.
- [37] R.G. Brewer and E.L. Hahn. [Coherent two-photon processes : Transient and steady-state cases](#). *Phys. Rev. A.*, 11 :1641, 1975.
- [38] Y. Stalgies, I. Siemers, B. Appasamy and P.E. Toschek. [Light shift and Fano resonances in a single cold ion](#). *J. Opt. Soc. Am. B.*, 15 :2505, 1998.
- [39] P.R. Hemmer, M.S. Shahriar, V.D. natoli and S. Ezekiel. [Ac Stark shifts in a two-zone Raman interaction](#). *J. opt. Soc. Am. B.*, 6 :1519, 1989.
- [40] J.E. Thomas, S. Ezekiel, C.C. Leiby Jr, R.H. Picard and C.R. Willis. [Ultrahigh-resolution spectroscopy and frequency standards in the micro-wave and far-infrared region using optical lasers](#). *Opt. Lett.*, 6 :298, 1981.
- [41] J.E. Thomas, P.R. Hemmer, S. Ezekiel, C.C. Leiby Jr, R.H. Picard and C.R. Willis. [Observation of Ramsey fringes using a stimulated Raman transition in a sodium atomic beam](#). *Phys. Rev. Lett.*, 48 :867, 1982.
- [42] P.R. Hemmer, S. Ezekiel and C.C. Leiby Jr. [Stabilization of a microwave oscillator using a resonance Raman transition in a sodium beam](#). *Opt. Lett.*, 8 :440, 1983.
- [43] P.R. Hemmer, G.P. Ontai and S. Ezekiel. [Precision studies of stimulated-resonance Raman interactions in atomic beam](#). *J. opt. Soc. Am. B.*, 3 :219, 1986.
- [44] Z.W. Barber, C.W. Hoyt, C.W. Oates, L. Hollberg, A.V. Taichenachev, and V.I. Yudin. [Direct excitation of the forbidden clock transition in neutral \$^{174}Yb\$ atoms confined to an optical lattice](#). *Phys. Rev. Lett.*, 96 :083002, 2006.
- [45] R. Santra, E. Arimondo, T. Ido, C. greene and J. Ye. [High accuracy optical clock via Three-Level Coherence in Neutral Bosonic \$^{88}Sr\$](#) . *Phys. Rev. Lett.*, 94 :173002, 2005.
- [46] F. Sorrentino, G. Ferrari, N. Poli, R. Drullinger, G.M. Tino. [Laser cooling and trapping of atomic strontium for ultra-cold physics, high-precision spectroscopy and quantum sensors](#). *Mod. Phys. Lett. B.*, 20 :1287, 2006.
- [47] T. Hong, C. Cramer, W. Nagourney and E.N. Forston. [Optical clocks based on ultra-narrow Three-photon resonances in alkaline earth atoms](#). *Phys. Rev. Lett.*, 94 :050801, 2005.
- [48] A.V. Taichenachev, V.I. Yudin, C.W. Oates, C.W. Hoyt, Z.W. Barber and L. Hollberg. [Magnetic Field-Induced Spectroscopy of Forbidden Optical Transitions with Application to Lattice-Based Optical Atomic Clocks](#). *Phys. Rev. Lett.*, 96 :083001, 2006.

- [49] T.H. Yoon. [Wave-function analysis of dynamic cancellation of ac Stark shifts in optical lattice clocks by use of pulsed Raman and electromagnetically-induced-transparency techniques](#). *Phys. Rev. A.*, 76 :013422, 2007.
- [50] M.M. Boyd. *HIGH PRECISION SPECTROSCOPY OF STRONTIUM IN AN OPTICAL LATTICE : TOWARDS A NEW STANDARD FOR FREQUENCY AND TIME*. Phd thesis at faculty of the graduate school of the University of Colorado, 2007.
- [51] M. Kajita, G. Gopakumar, M. Abe and M. Hada. [Elimination of the Stark shift from the vibrational transition frequency of optically trapped \$^{174}\text{Yb}^6\text{Li}\$ molecules](#). *Phys. Rev. A.*, **46** :022507, 2011.
- [52] M. Kajita and M. Abe. [Frequency uncertainty estimation for the \$^{40}\text{CaH}^+\$ vibrational transition frequencies observed by Raman excitation](#). *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, **45** :185401, 2012.
- [53] M. Kajita, G. Gopakumar, M. Abe and M. Hada. [Sensitivity of vibrationnal spectroscopy of optically trapped SrLi and CaLi molecule to variations in \$m_p/m_e\$](#) . *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 46 :025001, 2013.
- [54] K.M. Jones, E. Tiesinga, P.D. Lett and P.S. Julienne. [Ultracold photoassociation spectroscopy : Long-range molecules and atomic scattering](#). *Rev. Mod. Phys.*, 78 :483, 2006.
- [55] M.J. Mark, J.G. Danzl, E. Haller, M. Gustavsson, N. Bouloufa, O. Dulieu, H. Salami, T. Bergeman, H. Ritsch, R. Hart and H.C. Nagerl. [Dark resonances for ground-state transfer of molecular quantum gases](#). *Appl. Phys. B.*, 95 :219, 2009.

Chapitre 3

Vers la spectroscopie à très haute résolution de molécules d'origine atmosphérique et astrophysique

Ce chapitre est consacré au nouveau thème de recherche que je développe à l'UPMC et dans lequel le laboratoire LERMA2 s'est engagé sur les 4 à 5 prochaines années à travers un financement des équipements assuré par la plateforme Temps-Fréquence de l'UPMC, par le Domaine d'Intérêt Majeur ACAV (Astrophysique et Conditions d'Apparition de la Vie) avec le soutien de la région Ile de France. L'équipe du Pôle "molécules dans l'Univers" du LERMA2 est également partenaire du labex FIRST-TF qui regroupe les principaux laboratoires de recherche Temps-Fréquence nationaux (FEMTO-ST, GEOAZUR, LPL, SYRTE, UTINAM). L'équipe va développer un nouveau spectromètre infrarouge à diode laser QCL (quantum cascade laser) stabilisée sur un étalon primaire de fréquence à l'aide d'un lien optique entre le SYRTE situé à l'Observatoire de Paris et l'équipe du LERMA2 située à Jussieu. L'objectif final est d'atteindre un transfert d'exactitude relatif en fréquence de quelques 10^{-14} réalisé par l'intermédiaire d'un laser femto-seconde (peigne de fréquences) dont le taux de répétition sera asservi sur une référence de fréquence constituée par un étalon de fréquence micro-onde et un maser à hydrogène.

L'activité de l'équipe porte sur la physique moléculaire et ses applications pour l'étude de l'atmosphère terrestre ainsi que sur la compréhension de processus moléculaires dans des milieux astrophysiques (comètes, planètes, milieu interstellaire). Son expertise s'étend des études expérimentales et théoriques en laboratoire (spectrométrie infrarouge et ultraviolet, spectrométrie de masse, surfaces cryogéniques, analyse spectrale, calculs de taux de relaxation, constitution de bases de données moléculaires) aux campagnes de mesures sur le terrain (sondage in-situ ou à distance de la composition troposphérique et stratosphérique, surveillance satellitaire). La mesure par spectroscopie laser et par télédétection satellitaire des gaz atmosphériques sont des outils incontournables dans la recherche sur le réchauffement climatique et plus généralement sur l'environnement et la

CHAPITRE 3. VERS LA SPECTROSCOPIE À TRÈS HAUTE RÉOLUTION 156 DE MOLECULES D'ORIGINE ATMOSPHERIQUE ET ASTROPHYSIQUE

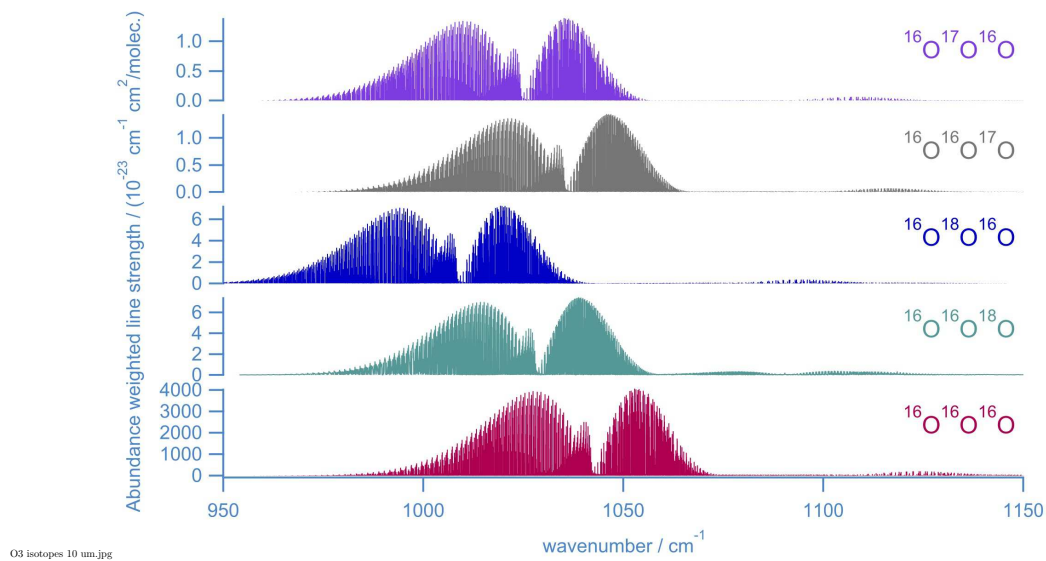


FIGURE 3.1 – *Signatures spectrales moléculaires des isotopologues de l’ozone à 10 μm (autour de 1000 cm⁻¹).*

dynamique physico-chimique de l’atmosphère. La qualité actuelle des données spectroscopiques contraint parfois fortement les modèles climatiques et chimiques qui se fondent sur la surveillance satellitaire globale et à long terme des espèces isotopiques présentes dans l’atmosphère [1]. L’équipe s’intéresse plus particulièrement aux molécules d’intérêt atmosphérique ou planétaire notamment l’ozone O_3 et ses différents isotopologues (contenant les isotopes ^{16}O , ^{17}O ou ^{18}O) dans le domaine spectral infrarouge vers $9.6 \mu m$ (900 cm^{-1} - 1000 cm^{-1}). Les signatures spectrales des isotopologues sont présentées sur la figure Fig. 3.1. La chimie atmosphérique terrestre de l’ozone n’est pas encore totalement comprise et conduit, par exemple, à un fractionnement isotopique anormal qui peut être imprimé à d’autres gaz atmosphériques par oxydation. Ce fractionnement isotopique anormal proviendrait d’une combinaison d’une rupture de symétrie [2] de la molécule d’ozone ($^{16}O^{16}O^{16}O$) lorsque un isotope d’oxygène lourd ^{17}O , ou ^{18}O , remplace un atome d’oxygène ^{16}O et d’effets de cinétique chimique lors de réactions entre les différentes formes d’oxygène [3]. Pour étudier ces processus en détail, l’équipe du laboratoire cherche à développer un nouveau spectromètre infrarouge à diode laser QCL (quantum cascade laser) à très haute exactitude en fréquence afin de remplacer à moyen terme la technique de stabilisation en longueur d’onde d’une diode laser avec un laser He:Ne de référence via un interféromètre de Michelson.

3.1 Le spectromètre du laboratoire à diode laser asservie sur un He:Ne

Les spectres moléculaires obtenus par diode laser infrarouge asservie sur un interféromètre contrôlé par un laser de référence sont extrêmement précis en longueur d'onde. Expérimentalement, cette méthode offre une grande sensibilité en détection. L'équipe dirigée par C. Janssen possède, depuis de longues années, un spectromètre à diode laser accordable autour de 9.6 microns stabilisé par un laser He:Ne à travers un interféromètre de Michelson [4]. Au laboratoire, les deux miroirs plans qui ferment habituellement les bras de l'interféromètre sont remplacés chacun par un oeil de chat dont l'un deux est mobile. Cette géométrie permet de séparer spatialement les faisceaux laser et d'éviter un retour de lumière parasite sur les sources optiques. Un schéma du trajet des faisceaux laser à travers les bras de l'interféromètre est présenté sur la figure Fig. 3.2(a) accompagné par une photo du dispositif sur la figure Fig. 3.2(b). Le principe d'obtention d'un spectre repose sur le contrôle de la différence de marche (de quelques cm à presque 1 m) entre les bras

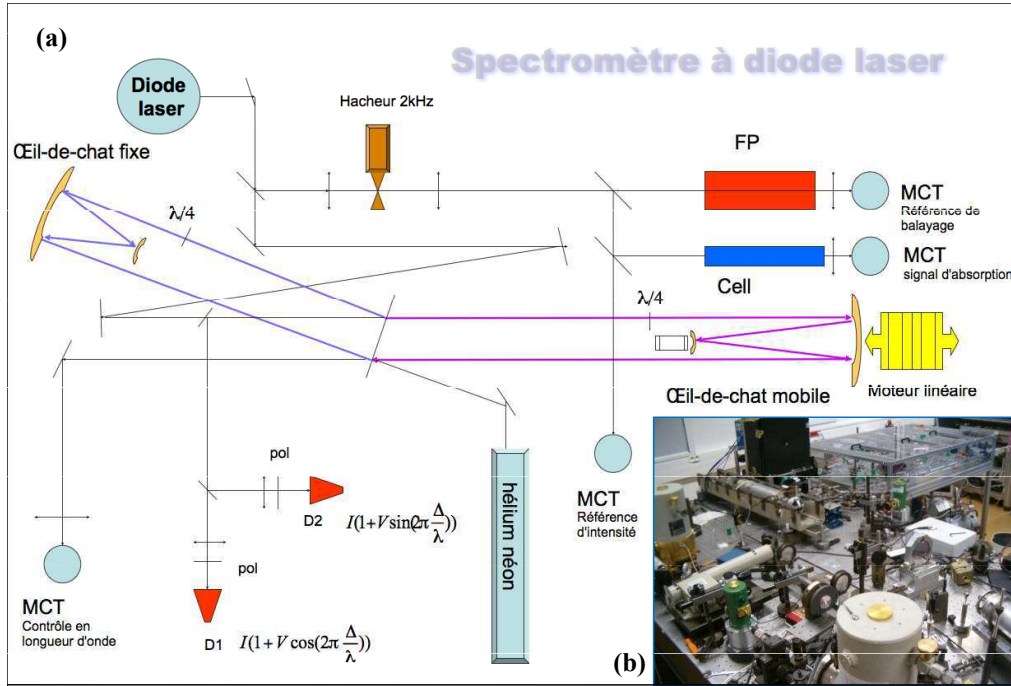


FIGURE 3.2 – (a) Schéma du parcours des faisceaux laser à travers les bras de l'interféromètre. (b) Photo du montage expérimental de l'interféromètre de Michelson.

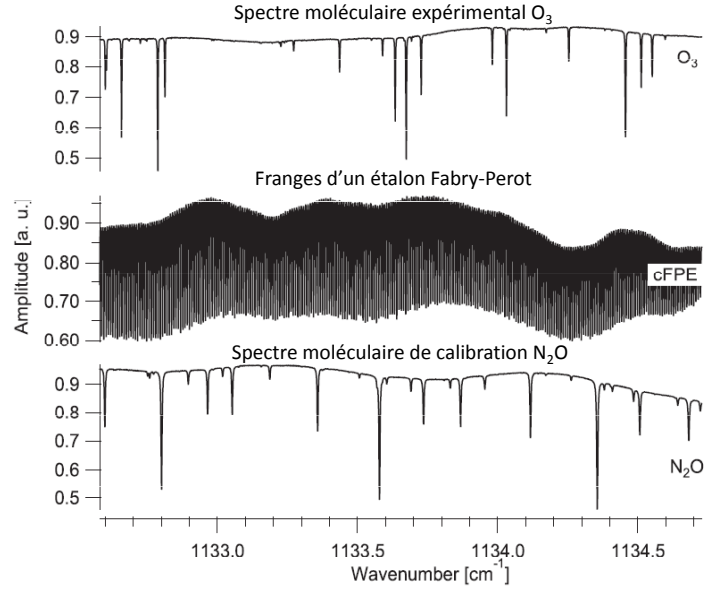


FIGURE 3.3 – Spectre expérimental des raies moléculaires de l'isotopologue principal de l'ozone $^{16}\text{O}_3$ entre 1132.5 cm^{-1} et 1134.5 cm^{-1} .

de l'interféromètre qui varie par pas discret de 10 nm à la longueur d'onde de 633 nm. Cette différence de marche est stabilisée à chaque pas effectué par l'oeil de chat mobile à l'aide d'une boucle d'asservissement utilisant le signal d'erreur réalisé grâce aux franges d'interférences d'un laser He:Ne qui éclaire le Michelson (modèle SL03/1 from SIOS Messtechnik GmbH de stabilité relative 5.10^{-9}). Une modulation de 2 kHz est finalement appliquée sur une partie du faisceau laser de la diode, stabilisée sur un ordre d'interférence des franges, qui sert à enregistrer le spectre moléculaire à l'aide d'une détection synchrone du signal d'absorption. Cet instrument est complémentaire des spectromètres à transformée de Fourier qui obtiennent des spectres sur des régions spectrales beaucoup plus étendues mais avec une plus faible résolution spectrale. Cet instrument, couplé aux différentes cellules d'absorption dont nous disposons, permet la détermination très précise de paramètres spectroscopiques (coefficient d'élargissement et de déplacement par la pression, intensité des raies) et fournit des données spectroscopiques à des projets satellitaires comme l'instrument SWIFT développé par l'Agence Spatiale Canadienne [5]. Un spectre expérimental des raies moléculaires de l'ozone entre 1132.5 cm^{-1} et 1134.5 cm^{-1} est présenté sur la figure Fig. 3.3. Il a été obtenu au laboratoire avec une diode laser à sel de plomb stabilisée par le contrôle interférométrique de la longueur d'onde [5]. Le pas minimal obtenu sur la diode laser émettant à 1133.5 cm^{-1} est de $2.4 \cdot 10^{-4}\text{ cm}^{-1}$ (soit environ 6 MHz). L'échelle en longueur d'onde est calibrée de manière absolue à l'aide de 11 positions en fréquence déterminées à partir d'un spectre moléculaire de N_2O . Un étalon confocal Fabry-Perot

(AL6000, Aerolaser, Germany) permet également de vérifier la linéarité du balayage en longueur d'onde et l'absence de sauts de modes de la diode laser. Les mesures ont ainsi permis de déterminer les positions absolues en nombre d'onde avec une exactitude de $4 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ et les intensités des raies moléculaires avec une incertitude de l'ordre de 1 à 2 %.

3.2 Le projet : spectromètre laser largement accordable à très haute résolution dans l'infrarouge

La plupart des bandes caractéristiques d'absorption rovibrationnelle des composés moléculaires atmosphériques se situent dans la région de l'infrarouge moyen entre 500 cm^{-1} ($20 \mu\text{m}$) et 4000 cm^{-1} ($2 \mu\text{m}$). Dans la fenêtre atmosphérique infrarouge qui nous intéresse

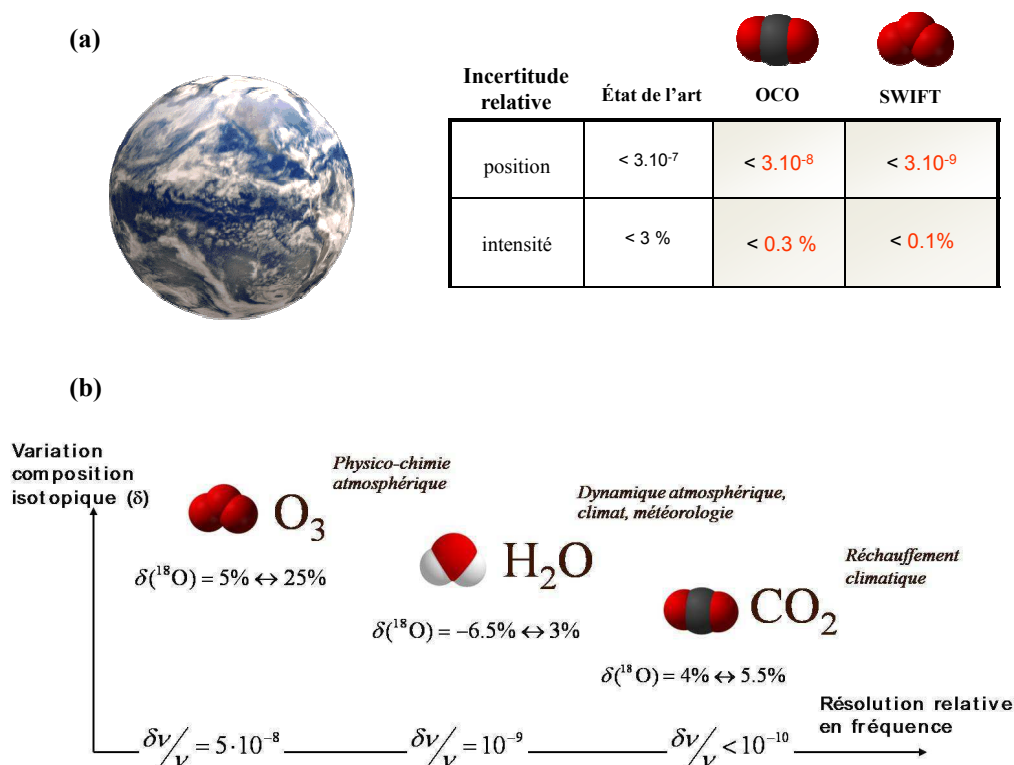


FIGURE 3.4 – (a) Exigences des programmes satellitaires comme OCO (Orbital Carbon Observatory) et SWIFT (Stratospheric Wind Interferometer For Transport Studies) sur la détermination des paramètres moléculaires du dioxyde de carbone CO_2 et de l'ozone O_3 atmosphérique à $10 \mu\text{m}$. (b) Variabilité naturelle de la composition isotopique de molécules atmosphériques en fonction de la résolution relative en fréquence du spectromètre.

CHAPITRE 3. VERS LA SPECTROSCOPIE À TRÈS HAUTE RÉOLUTION 160 DE MOLÉCULES D'ORIGINE ATMOSPHÉRIQUE ET ASTROPHYSIQUE

entre 8 et 14 μm (gamme de longueur d'onde privilégiée pour la détection satellitaire), les spectres rovibrationnels de molécules comme O_3 et CO_2 sont intenses et permettent par exemple d'étudier la photochimie de l'atmosphère martienne [6] ou de mesurer la vitesse des vents atmosphériques sur Vénus [7].

L'équipe s'attache au développement d'un spectromètre infrarouge autour de 900-1100 cm^{-1} asservi en fréquence à mieux que 10^{-8}cm^{-1} ($< 10^{-11}$ en valeur relative), stabilisé en intensité autour du pourcent, afin d'étudier les différents paramètres spectroscopiques de plusieurs isotopologues de l'ozone [8] avec une exactitude potentiellement 1000 fois meilleure que les diodes asservies sur un interféromètre contrôlé par un laser He:Ne. Les techniques d'asservissement en fréquence de sources lasers sur des références optiques ultra-stables permettent depuis quelques années d'envisager une réduction par plusieurs ordres de grandeur de leur fonction d'appareil [9, 10] pour de la spectroscopie quantitative à très haute résolution. Avec une telle précision, le spectromètre pourra répondre aux exigences de programmes satellitaires OCO et SWIFT et sur la détermination de certains paramètres moléculaires avec une très faible incertitude (voir la figure Fig. 3.4(a)). Une étude poussée des très faibles variations de la composition isotopique lors de la formation ou de la destruction de molécules atmosphériques pourra être également envisagée afin d'améliorer la compréhension de la dynamique atmosphérique. A titre d'exemple, je présente sur la figure Fig. 3.4(b) la résolution en fréquence nécessaire pour suivre des variations de composition isotopique de quelques ‰ sur plusieurs espèces moléculaires. Le projet de l'équipe représente un défi scientifique enthousiasmant à l'interface entre la physique moléculaire et le développement instrumental de sources lasers THz ultra-stables en laboratoire.

3.2.1 Spectroscopie d'absorption saturée de transitions rovibrationnelles de $^{16}\text{O}_3$ à 9.6 μm

Le projet commence avec la spectroscopie moléculaire de l'ozone en cellule de vapeur par absorption saturée à l'aide d'une source laser QCL opérationnelle centrée vers 1050 cm^{-1} monomode (type DFB) de puissance moyenne 50 mW vendue par la société Alpes Laser [11]. Une caractérisation des performances en fréquence de la source laser qui dépendra notamment du bruit du contrôleur en courant sera effectuée et pourra être comparée à la technique de contrôle interférométrique de la longueur d'onde. Un montage expérimental d'absorption saturée est en cours de réalisation afin d'éliminer la composante Doppler sur une transition moléculaire très intense de l'isotope principal de l'ozone autour de 1050.74 cm^{-1} . Les simulations des spectres moléculaires en transmittance à travers une cellule de longueur 10 cm à température ambiante et pour une pression de 40 mTorr sont présentées sur la figure Fig. 3.5. Afin d'analyser simplement les paramètres importants de la résonance moléculaire comme le contraste et la largeur homogène de la raie en fonction de l'intensité laser, on présente, sur la Fig. 3.5, le résultat d'un calcul de forme de raie que l'on obtient en régime d'absorption saturée de type pompe-sonde. En utilisant les paramètres moléculaires disponibles de l'ozone $^{16}\text{O}_3$ à partir de la base

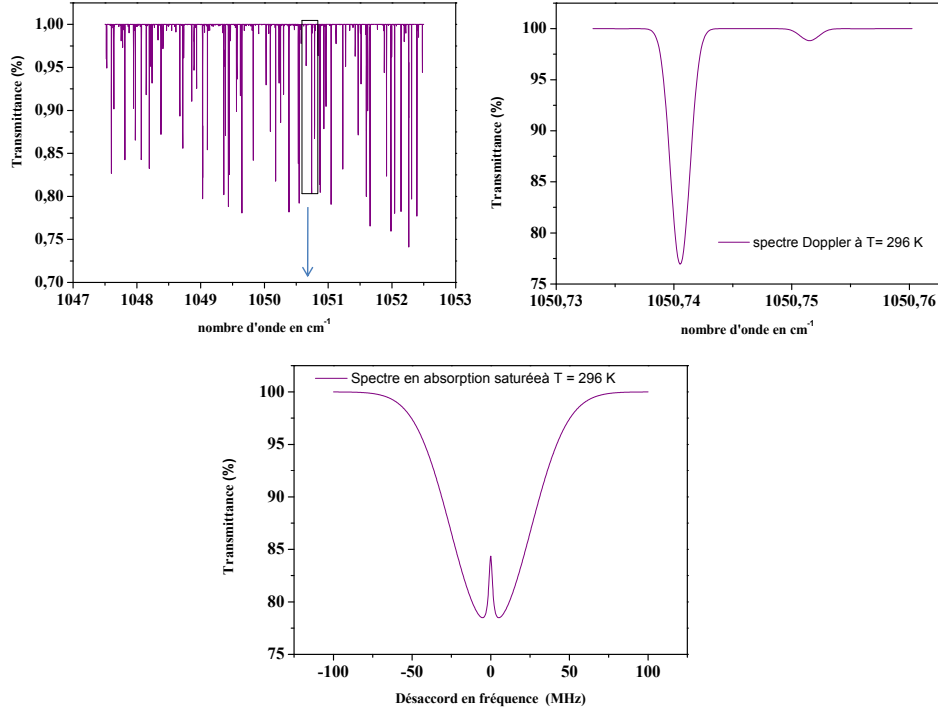


FIGURE 3.5 – *Simulation à $T = 296\text{ K}$ d'une raie moléculaire de forte intensité de l'isotopologue principal de l'ozone $^{16}\text{O}^{16}\text{O}^{16}\text{O}$ vers 1050.74 cm^{-1} par la technique d'absorption saturée dans une cellule de longueur 10 cm. La pression dans la cellule est de 40 mTorr. Avec une puissance de $100\text{ }\mu\text{W}$ et une section du faisceau laser de 2 cm, le paramètre de saturation vaut $S = I/I_{\text{sat}} = 0.6$.*

HITRAN 2004 pour une raie située vers 1050.74 cm^{-1} à une pression de 40 mTorr, on obtient un profil d'absorption saturée présentant une raie sans effet Doppler de contraste 25% avec une puissance laser proche de $100\text{ }\mu\text{W}$. La largeur totale attendue de la raie devrait se situer autour de 3 MHz en supposant une largeur instrumentale de 1 MHz pour la diode QCL et des contributions respectives de 200 kHz pour l'élargissement collisionnel par pression et de 30 kHz pour l'élargissement par temps de vol à travers le col du laser. Bien-sûr, une étude poussée du profil de raie permettra de mieux caractériser la contribution du bruit en fréquence apportée par le contrôleur commercial en courant de la diode. On pourra également s'intéresser à la réduction de la largeur spectrale instrumentale de la fonction d'appareil en dessous du MHz avec un montage en cavité étendue de la source QCL [12, 13]. On pourra envisager de verrouiller la source QCL sur la raie d'absorption saturée de l'ozone pour réaliser des mesures de déplacement de fréquence par pression à très haute résolution avec un peigne de fréquence optique [14, 15]. La source QCL stabilisée vers 1050 cm^{-1} répondra au besoin de la physique moléculaire de mesurer avec

CHAPITRE 3. VERS LA SPECTROSCOPIE À TRÈS HAUTE RÉOLUTION 162 DE MOLECULES D'ORIGINE ATMOSPHERIQUE ET ASTROPHYSIQUE

exactitude les déplacements de fréquence des raies en fonction de la pression qui ne sont pas bien connus dans cette région spectrale [16].

3.2.2 Stabilisation en longueur d'onde d'une diode QCL contrôlée à l'aide d'un peigne de fréquences optiques

Je décris, brièvement, la réalisation du spectromètre laser qui repose sur l'utilisation d'une source laser QCL accordable et asservie sur un peigne de fréquences référencé par une fibre optique sur un étalon primaire de fréquence micro-onde du SYRTE. Le développement instrumental s'inspire directement des publications [17, 18]. Un peigne de fréquences op-

Spectromètre laser infrarouge à très haute résolution à 10 μm

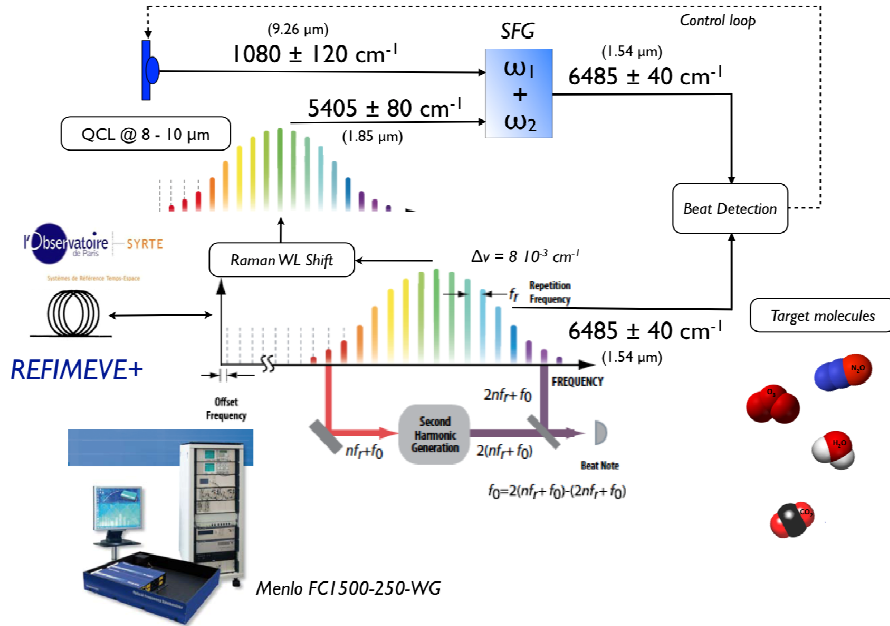


FIGURE 3.6 – Schéma simplifié du principe d'asservissement en longueur d'onde du spectromètre laser infrarouge à 10 microns à l'aide d'un peigne de fréquences optiques.

tiques délivre 700 mW à 1542 nm (Laser MENLO SYSTEM FC1500-250-WG, taux de répétition de 250 MHz) dont la cadence de répétition f_r est asservi à l'aide d'une boucle à verrouillage de phase à partir d'un signal de référence à 1542 nm distribué par une fibre optique. On assure l'asservissement de la source QCL à l'aide d'une somme de fréquence (Sum Frequency Generation en anglais) entre le peigne de référence décalé vers 1850 nm et la source laser à travers un cristal non linéaire par exemple de type AgGaS₂ [17]. On

recombine ensuite le peigne somme $f_m^{SFG} = f_0 + m \cdot f_r + f_{QCL}$ obtenu avec le peigne de fréquence initial appelée $f_n = f_0 + n \cdot f_r$. La Fig. 3.6 décrit le principe de verrouillage de phase à partir du battement entre le peigne initial et le peigne somme à l'aide d'un dispositif électronique de détection fourni par MENLO SYSTEM ("Beam Detection Unit" ou BDU en anglais). La correction électronique est appliquée sur le contrôleur en courant de la diode laser QCL. Le résultat obtenu est $f_m^{SFG} - f_n = f_{QCL} + (m - n)f_r$ indépendant de l'offset f_0 du peigne. Le spectre du battement $\nu = f_m^{SFG} - f_n$ reproduit avec une très grande précision la fonction d'appareil de la diode QCL puisque la différence $(m - n)f_r$ n'a potentiellement qu'une très faible largeur spectrale. Pour déterminer la fréquence de la diode QCL avec exactitude, il suffit alors de mesurer avec un compteur la fréquence du battement ν . La démarche est assez proche de celle de l'auto-référencement utilisée en métrologie des fréquences optiques pour déterminer la fréquence de décalage d'un peigne femto-seconde (fréquence offset f_0). Toutefois, dans notre projet, le mélange des 2 peignes de fréquence conduit directement à la mesure directe de la fréquence à $9.6 \mu\text{m}$ à partir de la cadence de répétition en éliminant le décalage en fréquence du peigne. Le balayage fin en longueur d'onde de la diode QCL est réalisé à l'aide d'un synthétiseur de fréquence qui peut agir sur la fréquence du battement avec une plage de balayage qui dépendra de la bande passante d'asservissement en fréquence. La grande accordabilité sera effectuée en modifiant directement la fréquence de la diode QCL pour aller chercher le battement suivant entre le mode $n + 1$ du peigne initial et le mode m du peigne somme.

Lorsque le dispositif d'asservissement du spectromètre sera pleinement opérationnel, l'équipe se lancera dans la spectroscopie de l'ozone pour la mesure absolue des intensités de raie [19] et l'étude des effets isotopiques.

3.2.3 Variation des constantes fondamentales, transitions rotationnelles et spectroscopie laser à 2 photons

Comme le rappelle Edouard Brezin dans son livre "Demain la physique", c'est en 1919, que Théodore Kaluza introduit une généralisation de la théorie d'Einstein, comprenant un espace-temps à cinq dimensions, dans lequel les quantités comme la constante de structure fine α et la force électrique entre un proton et un électron ne sont plus des paramètres constants mais déterminés par des champs variables dans l'espace et le temps. L'éventualité d'une variation temporelle de certaines constantes fondamentales avait été aussi suggérée par P.A.M. Dirac et d'autres physiciens en proposant de faire des mesures précises de certains phénomènes dépendant de la structure fine ou du rapport de la masse du proton sur la masse de l'électron. Par exemple, en étudiant les spectres émis par des galaxies très lointaines, on peut avoir accès à la valeur de α , une dizaine de milliards d'années dans le passé. La contrainte la plus forte sur la variabilité temporelle de α a été effectuée en étudiant la composition isotopique des produits de réactions nucléaires qui ont eu lieu, il y a deux milliards d'années, dans le réacteur naturel d'Oklo au Gabon [20]. Des mesures absolues de fréquence hyperfine du césium effectuées pendant 2 ans sur une fontaine atomique au SYRTE ont également permis de contraindre la stabilité de la constante de structure fine

CHAPITRE 3. VERS LA SPECTROSCOPIE À TRÈS HAUTE RÉOLUTION 164 DE MOLÉCULES D'ORIGINE ATMOSPHÉRIQUE ET ASTROPHYSIQUE

sur des temps beaucoup plus courts [21]. En 2007, les comparaisons de fréquence entre une horloge à ion mercure et une fontaine à césium au NIST pendant 6 ans contraignent la stabilité de la constante de structure fine au niveau de $\dot{\alpha}/\alpha < 1.3 \times 10^{-16} \text{ an}^{-1}$ [22]. En 2008, la contrainte sur la variation temporelle est portée au niveau de $\dot{\alpha}/\alpha < 2.3 \times 10^{-17} \text{ an}^{-1}$ [23]. Tous les tests de physique fondamentale réalisés aujourd'hui cherchent à mettre en évidence une éventuelle violation du principe d'invariance de Lorentz et de la symétrie CPT (Charge, Parité, Temps) dans le cadre d'une théorie quantique des champs. Une brisure de symétrie en physique du modèle standard impliquerait une dépendance spatiale et temporelle des constantes fondamentales de la nature.

Avec un peigne de fréquences optiques asservi sur un étalon primaire de fréquence, le laboratoire peut envisager de participer à la mesure des variations temporelles des constantes fondamentales sur des molécules diatomiques (CO, OH, OD, etc...) intervenant en physico-chimie atmosphérique. Un radical libre, comme la molécule OH par exemple, présente des doublets rotationnels séparés de 1.6 GHz entre les niveaux hyperfins $\Delta F = 0$ de l'état fondamental $^2\Pi_{3/2}$ insensibles au champ magnétique du premier ordre. Le groupe de Jun Ye au JILA mesure précisément la fréquence du doublet rotationnel de OH sur un faisceau moléculaire ralenti par un décélérateur à effet Stark qui traverse une cavité micro-onde. La contrainte attendue sur la variation $\dot{\alpha}/\alpha$ pourrait être inférieure à 1 ppm sur 10^{10} ans en combinant la mesure de fréquence moléculaire par spectroscopie en laboratoire avec les mesures de fréquences d'émission maser OH dans les nuages interstellaires observées par les radiotélescopes [24].

D'autres tests fondamentaux sont envisageables, comme l'étude de la stabilité temporelle du rapport de la masse du proton sur la masse de l'électron $\mu = m_p/m_e$ qui peut être également exécutée sur des transitions moléculaires rovibrationnelles. Le test le plus contraignant jusqu'à maintenant a été effectué au LPL par le groupe "métrologie, molécules et tests fondamentaux" en comparant, pendant deux ans, une transition vibrationnelle de la molécule SF₆ avec les mesures de fréquence hyperfine d'une fontaine atomique à césium [25]. Il place cette limite à $\dot{\mu}/\mu < 5.6 \times 10^{-14} \text{ an}^{-1}$.

Quelques groupes de recherche internationaux s'intéressent, par exemple, à l'intercomparaison de transitions à 2 photons micro-onde sur le monoxyde de carbone CO, entre deux niveaux rotationnels presque dégénérés, qui imposent un test encore plus sensible de la variation relative $\dot{\mu}/\mu$ au niveau de 10^{-15} an^{-1} [26]. Là encore, la spectroscopie d'un jet moléculaire de CO subissant une décélération dans une cavité en guide d'ondes de Ramsey est proposée pour mesurer des fréquences de transition entre 1.6 GHz et 2.5 GHz avec une résolution relative espérée inférieure à 10^{-12} après 300 heures d'intégration. La géométrie de type fontaine est également développée dans le groupe de W. Ubachs du Laser Centre Vrije Universiteit aux Pays-Bas pour observer, par la mesure sur plusieurs années d'une transition micro-onde à 22.6 GHz, le taux d'inversion de la configuration d'orientation d'une molécule d'ammoniaque NH₃ par effet tunnel à travers une barrière de potentiel [27]. La stabilité temporelle de ce taux de conversion est également un test contraignant de la variation relative $\dot{\mu}/\mu$.

Un peigne optique stabilisé en fréquence constitue à cet égard une référence idéale pour générer une onde micro-onde cohérente à très bas bruit de phase par l'interrogation des transitions moléculaires dans une cavité résonnante [28]. On peut également directement asservir deux sources lasers, chacune sur une dent d'un peigne de fréquence afin d'assurer la cohérence de phase entre les deux fréquences optiques pour l'interrogation micro-onde [29]. Toutes les expériences précédentes reposent sur l'utilisation de cavités électromagnétiques. Elles peuvent également s'inspirer de la spectroscopie micro-onde par transition à 2 photons asservie sur un peigne de fréquence référencé avec un dispositif expérimental similaire à la stabilisation d'un oscillateur micro-onde par effet Raman stimulé [30] ou envisager une géométrie de type fontaine [31]. Pour finir, on note que le taux d'excitation à 2 photons, qui demande une puissance micro-onde élevée, peut induire des déplacements de fréquence de type Bloch-Siegert assez sévères sur la transition moléculaire. Ces déplacements de fréquence et la sensibilité à la fluctuation d'intensité du champ micro-onde pourraient être éliminés par l'utilisation d'une séquence d'impulsions lasers EIT/Raman ou Hyper-Ramsey convenablement paramétrées (voir le chapitre 2). Avec les derniers travaux entrepris sur le ralentissement par effet Stark de jets moléculaires et le piégeage de molécules polaires dans une trappe électrostatique ou dans une configuration de type synchrotron [32], les transitions pourraient être observées avec des temps d'interrogation approchant la durée de vie des niveaux rotationnels de l'état fondamental (60 ms pour OH) et améliorer davantage l'exactitude des mesures d'une fréquence moléculaire.

Bibliographie

- [1] C. Frankenberg *et al.* [Dynamic processes governing lower-tropospheric HDO/H₂O ratios as observed from space and ground.](#) *Science*, 325 :1374, 2009.
- [2] Y.Q. Gao and R.A. Marcus. [Strange and unconventional isotopic effect in ozone formation.](#) *Science*, 293 :259, 2001.
- [3] K. Mauersberger, B. Erbacher, D. Krankowsky, J. Gunther and R. Nickel. [Ozone isotope enrichment : Isotoper-specific rate coefficients.](#) *Science*, 283 :370, 1999.
- [4] A. Valentin. [Tunable diode laser wavelength control by a Michelson interferometer.](#) *Spectrochim Acta A*, 52 :823, 1996.
- [5] M. Guinet, D. Mondelain, C. Janssen and C. Camy-Peyret. [Laser spectroscopic study of ozone in the 100←000 band for the SWIFT instrument.](#) *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 111 :961, 2010.
- [6] V.A. Krasnopolsky. [Seasonal variations of photochemical tracers at low and middle latitudes on Mars : Observations and models.](#) *Icarus*, 201 :564, 2009.
- [7] M. Soorning. [Venus upper atmosphere winds from ground-based heterodyne spectroscopy of CO₂ at 10 \$\mu\$ m wavelength.](#) *Planetary and Space Science*, 56 :1399, 2008.
- [8] C. Janssen, B. Tuzson. [A diode laser spectrometer for symmetry selective detection of ozone isotopomers.](#) *Appl. Phys. B.*, 82 :487, 2006.

- [9] F. Bielsa, A. Douillet, T. Valenzuela, J.P. Karr and L. Hillico. [Narrow-line phase-locked quantum cascade laser in the 9.2 \$\mu\text{m}\$ range](#). *Opt. Lett.*, 32 :1641, 2007.
- [10] S. Borri, I. Galli, F. Cappelli, A. Bismuto, S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, J. Faist and P. De Natale. [Direct link of a mid-infrared QCL to a frequency comb by optical injection](#). *Opt. Lett.*, 37 :1011, 2012.
- [11] A. Castrillo, E. De Tommasi, L. Gianfrani, L. Sirigu and J. Faist. [Doppler-free saturated-absorption spectroscopy of CO₂ at 4.3 \$\mu\text{m}\$ by means of a distributed feed-back quantum cascade laser](#). *Opt. Lett.*, 31 :3040, 2006.
- [12] R.A. Cendejas, M.C. Phillips, T.L. Myers and M.S. Taubman. [Single-mode, narrow-linewidth external cavity quantum cascade laser through optical feedback from a partial-reflector](#). *Opt. Exp.*, 18 :26037, 2010.
- [13] A. Hugi, R. Maulini and J. Faist. [External cavity quantum cascade laser](#). *Semicond. Sci. Technol.*, 25 :083001, 2010.
- [14] S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, P. De Natale, S. Borri, I. Galli, T. Leveque and L. Gianfrani. [Frequency-comb-referenced quantum-cascade laser at 4.4 \$\mu\text{m}\$](#) . *Opt. Lett.*, 32 :988, 2007.
- [15] S. Borri, S. Bartalini, I. Galli, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti, A. Castrillo, L. Gianfrani and P. De Natale. [Lamb-dip-locked quantum cascade laser for comb-referenced IR absolute frequency measurements](#). *Opt. Exp.*, 16 :11637, 2008.
- [16] A. Barbe, S. Mikhailenko, E. Starikova, M.-R. De Backer, V.I.G. Tyuterev, D. Mondelain, S. Kass, A. Campargue, C. Janssen, S. Tashkun, R. Kochanov, R. Gamache, J. Orphal. [Ozone spectroscopy in the electronic ground state : High-resolution spectra analyses and update of line parameters since 2003](#). *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 130 :172, 2013.
- [17] A. Amy-Klein, A. Goncharov, M. Guinet, C. Daussy, O. Lopez, A. Shelkovernikov and C. Chardonnet. [Absolute frequency measurement of a SF₆ two-photon line by use of a femtosecond optical comb and sum-frequency generation](#). *Opt. Lett.*, 30 :3320, 2005.
- [18] B. Chanteau, O. Lopez, W. Zhang, D. Nicolodi, B. Argence, F. Auguste, M. Abgrall, C. Chardonnet, G. Santarelli, B. Darquié, Y. Le Coq and A. Amy-Klein. [Mid-infrared laser phase-locking to a remote near-infrared frequency reference for high-precision molecular spectroscopy](#). *New Journal of Physics*, 15 :073003, 2013.
- [19] M.A.H. Smith, V. Malathy Devi, D.C. Benner. [The quest for ozone intensities in the 9-11 mm region : A retrospective](#). *J. of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113 :825, 2012.
- [20] T. Damour and F. Dyson. [The Oklo bound on the time variation of the fine-structure constant revisited](#). *Nucl. Phys. B.*, 480 :37, 1996.
- [21] S. Bize. *TESTS FONDAMENTAUX A L'AIDE D'HORLOGES A ATOMES FROIDS DE RUBIDIUM ET DE CESIUM*. Thèse de doctorat de l'Université UPMC, 2001.

- [22] T.M. Fortier, N. Ashby, J.C. Bergquist, M.J. Delaney, S.A. Diddams, T.P. Heavner, L. Hollberg, W.M. Itano, S.R. Jefferts, K. Kim, F. Levi, L. Lorini, W.H. Oskay, T.E. Parker, J. Shirley and J. E. Stalnaker. [Precision atomic spectroscopy for improved limits on variation of the fine structure constant and local position invariance](#). *Phys. Rev. Lett.*, 98 :070801, 2007.
- [23] T. Rosenband, D.B. Hume, P.O. Schmidt, C.W. Chou, A. Brusch, L. Lorini, W.H. Oskay, R.E. Drullinger, T.M. Fortier, J.E. Stalnaker, S.A. Diddams, W.C. Swann, N.R. Newbury, W.M. Itano, D.J. Wineland and J. C. Bergquist. [Frequency ratio of \$\text{Al}^+\$ and \$\text{Hg}^+\$ single-ion optical clocks ; Metrology at the 17th decimal place](#). *Science*, 319 :1808, 2008.
- [24] E.R. Hudson, H.J. Lewandowski, B.C. Sawyer and Jun Ye. [Cold Molecule Spectroscopy for Constraining the Evolution of the Fine Structure Constant](#). *Phys. Rev. Lett.*, 96 :143004, 2006.
- [25] A. Shelkovnikov, R.J. Butcher, C. Chardonnet and A. Amy-Klein. [Stability of the proton-to-electron mass ratio](#). *Phys. Rev. Lett.*, 100 :150801, 2008.
- [26] H.L. Bethlem and W. Ubachs. [Testing the time-invariance of fundamental constants using microwave spectroscopy on cold diatomic radicals](#). *Faraday Discuss.*, 142 :25, 2009.
- [27] H.L. Bethlem, M. Kajita, B. Sartakov, G. Meijer and W. Ubachs. [Prospects for precision measurements on ammonia molecules in a fountain](#). *Eur. Phys. J. Spec. Top.*, 163 :55, 2008.
- [28] J. Millo, R. Boudot, M. Lours, P.Y. Bourgeois, A.N. Luiten Y. Le Coq Y. Kersalé and G. Santarelli. [Ultra-low-noise microwave extraction from fiber-based optical frequency comb](#). *Opt. Lett.*, 34 :3707, 2009.
- [29] A.V. Akimov, N.N. Kolachevsky, A.V. Sokolov, A.N. Matveev, S.I. Kanorsky, R.A. Kits, A.A. Papchenko and V.N. Sorokin. [Spectroscopy of coherent population trapping with a light source based on a femtosecond laser](#). *Quantum Electronics*, 34 :983, 2004.
- [30] P.R. Hemmer, S. Ezekiel and C.C. Leiby Jr. [Stabilization of a microwave oscillator using a resonance Raman transition in a sodium beam](#). *Opt. Lett.*, 8 :440, 1983.
- [31] R.G. Beausoleil and T.W. Hansch. [Ultrahigh-resolution two-photon optical Ramsey spectroscopy of an atomic fountain](#). *Phys Rev. A.*, 33 :1661, 1986.
- [32] C.E. Heiner, D. Carty, G. Meijer and H.L. Bethlem. [A molecular synchrotron](#). *Nat. Phys.*, 3 :115, 2007.

Annexe A

La structure atomique d'un alcalin : exemple du ^{133}Cs

Dans cette annexe, on présente la structure hyperfine et magnétique complète des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$ dans la base $\{|m_I, m_J\rangle\}$ pour le ^{133}Cs . On utilise les deux ouvrages de C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, "Mécanique quantique : tomes I et II" pour la définition des opérateurs de projection. Par convention, les valeurs propres quantifiées de la projection des moments angulaires le long de l'axe de quantification sont proportionnelles à \hbar . La constante de structure hyperfine $A(^{2S+1}L_J)$ est homogène à une énergie. Toutes les données expérimentales et les références associées sont présentées dans un tableau à la fin de l'annexe.

A.1 Correction magnétique en champ faible

Lorsqu'un atome est plongé dans un champ magnétique B de très faible intensité, l'hamiltonien H_Z de l'atome dans un champ magnétique s'écrit comme la somme des 3 moments magnétiques du mouvement orbital \vec{L} , du spin de l'électron \vec{S} et du spin du noyau \vec{I} :

$$H_Z = -(\vec{M}_L + \vec{M}_S + \vec{M}_I) \cdot \vec{B} = (g_L \vec{L} + g_S \vec{S} - g_I \vec{I}) \cdot \frac{\mu_B}{\hbar} \vec{B} \quad (\text{A.1})$$

avec le magnéton de Bohr $\mu_B = eh/2m_e$ et la convention de signe prise pour le facteur de Landé nucléaire $g_I > 0$. Avec le théorème de projection appliqué sur les moments angulaires, on obtient les relations suivantes :

$$\vec{S} = \frac{\langle \vec{S} \cdot \vec{J} \rangle}{\hbar^2 J(J+1)} \frac{\langle \vec{J} \cdot \vec{F} \rangle}{\hbar^2 F(F+1)} \vec{F}, \quad \vec{L} = \frac{\langle \vec{L} \cdot \vec{J} \rangle}{\hbar^2 J(J+1)} \frac{\langle \vec{J} \cdot \vec{F} \rangle}{\hbar^2 F(F+1)} \vec{F}, \quad \vec{I} = \frac{\langle \vec{I} \cdot \vec{F} \rangle}{\hbar^2 F(F+1)} \vec{F} \quad (\text{A.2})$$

ce qui revient à considérer que tous les opérateurs vectoriels sont proportionnels au moment angulaire \vec{F} . La correction en énergie $\langle H_Z \rangle_{F, m_F} = \Delta E_Z$ s'écrit alors dans la théorie des

perturbations au premier ordre :

$$\Delta E_Z = m_F \mu_B B \left(\left[g_L \frac{\langle \vec{L} \cdot \vec{J} \rangle}{\hbar^2 J(J+1)} + g_S \frac{\langle \vec{S} \cdot \vec{J} \rangle}{\hbar^2 J(J+1)} \right] \frac{\langle \vec{J} \cdot \vec{F} \rangle}{\hbar^2 F(F+1)} - g_I \frac{\langle \vec{I} \cdot \vec{F} \rangle}{\hbar^2 F(F+1)} \right) \quad (\text{A.3})$$

A partir de la combinaison des moments angulaires $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ et $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ et en calculant les valeurs moyennes associées aux valeurs propres des opérateurs de H_Z , on obtient finalement l'expression de l'éclatement des sous-niveaux Zeeman en champ faible :

$$\Delta E_Z = m_f \mu_B B \left(g_J \left[\frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} \right] - g_I \left[\frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} \right] \right) \quad (\text{A.4})$$

avec le facteur de Landé effectif $g_J = g_L \frac{J(J+1) - S(S+1) + L(L+1)}{2J(J+1)} + g_S \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}$. Le déplacement en énergie est dans ce cas linéaire avec le champ. Le traitement perturbatif est valable tant que la correction apportée par l'application d'un champ magnétique reste petite devant l'hamiltonien de structure hyperfine.

A.2 Hamiltonien hyperfin et magnétique en champ intermédiaire

Le hamiltonien nécessaire au calcul en champ intermédiaire s'écrit en prenant le champ magnétique \vec{B} selon l'axe Oz :

$$H = A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \vec{I} \cdot \vec{J} + g_J \mu_B B/\hbar \cdot J_Z - g_I \mu_B B/\hbar \cdot I_Z \quad (\text{A.5})$$

Le produit $\vec{I} \cdot \vec{J}$ s'écrit avec les opérateurs I_x, I_y, I_z et J_x, J_y, J_z :

$$\vec{I} \cdot \vec{J} = I_x J_x + I_y J_y + I_z J_z = \frac{1}{2} [I_+ J_- + I_- J_+] + I_z J_z \quad (\text{A.6})$$

en posant $I_{\pm} = I_x \pm iI_y$, $J_{\pm} = J_x \pm iJ_y$. Les opérateurs I_{\pm}, J_{\pm} et I_z, J_z agissent sur les états propres $|m_I, m_J\rangle$ tels que :

$$\begin{aligned} I_{\pm} J_{\mp} |m_I, m_J\rangle &= \hbar^2 \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I \pm 1)} \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J \mp 1)} |m_I \pm 1, m_J \mp 1\rangle \\ I_z J_z |m_I, m_J\rangle &= \hbar^2 m_I m_J |m_I, m_J\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

Dans la base $\{|m_I, m_J\rangle\}$, le hamiltonien s'écrit donc :

$$\begin{aligned} H|m_I, m_J\rangle &= A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \left[\frac{\bar{I}_+ \bar{J}_-}{2} |m_I + 1, m_J - 1\rangle + \frac{\bar{I}_- \bar{J}_+}{2} |m_I - 1, m_J + 1\rangle \right] \\ &\quad + A(^{2S+1}L_J) m_I m_J |m_I, m_J\rangle \\ &\quad + g_J \mu_B B m_J |m_I, m_J\rangle - g_I \mu_B B m_I |m_I, m_J\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

$ ^2P_{3/2}, m_F - \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$	$ ^2P_{3/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ ^2P_{3/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$ ^2P_{3/2}, m_F + \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$	$ ^2P_{1/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ ^2P_{1/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	$ ^2S_{1/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$	$ ^2S_{1/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$	
$A(^2P_{3/2}), \mu_B B$	$A(^2P_{3/2})$	0	0	0	0	0	0	$ ^2P_{3/2}, m_F - \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle$
$A(^2P_{3/2})$	$A(^2P_{3/2}), \mu_B B$	$A(^2P_{3/2})$	0	0	0	0	0	$ ^2P_{3/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$
0	$A(^2P_{3/2})$	$A(^2P_{3/2}), \mu_B B$	$A(^2P_{3/2})$	0	0	0	0	$ ^2P_{3/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$
0	0	$A(^2P_{3/2})$	$A(^2P_{3/2}), \mu_B B$	0	0	0	0	$ ^2P_{3/2}, m_F + \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle$
0	0	0	0	$A(^2P_{1/2}), \mu_B B$	$A(^2P_{1/2})$	0	0	$ ^2P_{1/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$
0	0	0	0	$A(^2P_{1/2})$	$A(^2P_{1/2}), \mu_B B$	0	0	$ ^2P_{1/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$
0	0	0	0	0	0	$A(^2S_{1/2}), \mu_B B$	$A(^2S_{1/2})$	$ ^2S_{1/2}, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle$
0	0	0	0	0	0	$A(^2S_{1/2})$	$A(^2S_{1/2}), \mu_B B$	$ ^2S_{1/2}, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle$

FIGURE A.1 – Structure hyperfine et magnétique de l'état fondamental et des premiers états excités de l'atome de césium ^{133}Cs . Chaque élément de matrice contient des termes proportionnels au couplage hyperfin $A(^{2S+1}L_J)$ et au terme d'interaction magnétique $\mu_B B$. Ces éléments de matrice sont calculés dans la base $\{|m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle\}$ pour les états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et dans la base $\{|m_F - \frac{3}{2}, \frac{3}{2}\rangle, |m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2}\rangle, |m_F + \frac{3}{2}, -\frac{3}{2}\rangle\}$ pour l'état $6^2P_{3/2}$. Les blocs de matrice 4×4 et 2×2 sont définis dans la figure Fig. A.2.

avec les composantes $\bar{I}_{\pm}\bar{J}_{\mp} = \hbar^2 \sqrt{I(I+1) - m_I(m_I \pm 1)} \sqrt{J(J+1) - m_J(m_J \mp 1)}$

On peut également changer de base des états propres : $\{|m_I, m_J\rangle\} \longrightarrow \{|m_F - m_J, m_J\rangle\}$. Le hamiltonien devient :

$$\begin{aligned}
 H|m_f - m_J, m_J\rangle = & \\
 & A(^{2S+1}L_J)/\hbar^2 \left[\frac{\bar{I}_{\pm}\bar{J}_{\mp}}{2} |m_F - m_J + 1, m_J - 1\rangle + \frac{\bar{I}_{\mp}\bar{J}_{\pm}}{2} |m_F - m_J - 1, m_J + 1\rangle \right] \quad (\text{A.9}) \\
 & + A(^{2S+1}L_J)(m_f - m_J)m_J|m_f - m_J, m_J\rangle + g_j\mu_B B m_J|m_f - m_J, m_J\rangle \\
 & - g_I\mu_B B(m_f - m_J)|m_f - m_J, m_J\rangle
 \end{aligned}$$

Matrice des états $6^2S_{1/2}$ et $6^2P_{1/2}$ dans la base $\left\{ \left| ^{2S+1}L_J, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle; \left| ^{2S+1}L_J, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \right\}$

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{2} A(^{2S+1}L_J)(m_F - \frac{1}{2}) + \frac{1}{2} g_J \mu_B B & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2} + 1)} \\ -g_J \mu_B (m_F - \frac{1}{2}) & \times \sqrt{J(J+1) - \frac{1}{2}(\frac{1}{2} - 1)} \\ \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2} - 1)} & -\frac{1}{2} A(^{2S+1}L_J)(m_F + \frac{1}{2}) - \frac{1}{2} g_J \mu_B B \\ \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{2}(-\frac{1}{2} + 1)} & -g_J \mu_B (m_F + \frac{1}{2}) \end{pmatrix}$$

Matrice de l'état $6^2P_{3/2}$ dans la base $\left\{ \left| ^{2S+1}L_J, m_F - \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle; \left| ^{2S+1}L_J, m_F - \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle; \left| ^{2S+1}L_J, m_F + \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle; \left| ^{2S+1}L_J, m_F + \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \right\}$

$$\begin{pmatrix} \frac{3}{2} A(^{2S+1}L_J)(m_F - \frac{3}{2}) + \frac{3}{2} g_J \mu_B B & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{3}{2})(m_F - \frac{3}{2} + 1)} & 0 & 0 \\ -g_J \mu_B (m_F - \frac{3}{2}) & \times \sqrt{J(J+1) - \frac{3}{2}(\frac{3}{2} - 1)} & 0 & 0 \\ \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2} - 1)} & \frac{1}{2} A(^{2S+1}L_J)(m_F - \frac{1}{2}) + \frac{1}{2} g_J \mu_B B & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F - \frac{1}{2})(m_F - \frac{1}{2} + 1)} & 0 \\ \times \sqrt{J(J+1) - \frac{1}{2}(\frac{1}{2} + 1)} & -g_J \mu_B (m_F - \frac{1}{2}) & \times \sqrt{J(J+1) - \frac{1}{2}(\frac{1}{2} - 1)} & \\ 0 & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2} - 1)} & -\frac{1}{2} A(m_F + \frac{1}{2}) - \frac{1}{2} g_J \mu_B B & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F + \frac{1}{2})(m_F + \frac{1}{2} + 1)} \\ \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{2}(-\frac{1}{2} + 1)} & \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{2}(-\frac{1}{2} + 1)} & -g_J \mu_B (m_F + \frac{1}{2}) & \times \sqrt{J(J+1) + \frac{1}{2}(-\frac{1}{2} - 1)} \\ 0 & 0 & \frac{A(^{2S+1}L_J)}{2} \sqrt{I(I+1) - (m_F + \frac{3}{2})(m_F + \frac{3}{2} - 1)} & -\frac{3}{2} A(^{2S+1}L_J)(m_F + \frac{3}{2}) - \frac{3}{2} g_J \mu_B B \\ \times \sqrt{J(J+1) + \frac{3}{2}(-\frac{3}{2} + 1)} & & \times \sqrt{J(J+1) + \frac{3}{2}(-\frac{3}{2} + 1)} & -g_J \mu_B (m_F + \frac{3}{2}) \end{pmatrix}$$

FIGURE A.2 – Matrices des niveaux hyperfins et des sous-niveaux Zeeman dans $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$.

où les composantes qui agissent sur les états propres $|m_F - m_J, m_J\rangle$ sous l'action des opérateurs de projection sont maintenant définies par :

$$\bar{I}_{\pm} \bar{J}_{\mp} = \hbar^2 \sqrt{I(I+1) - (m_F - m_J)(m_F - m_J \pm 1)} \cdot \sqrt{J(J+1) - (m_J)(m_J \mp 1)} \quad (\text{A.10})$$

A.3 La structure atomique des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$

La structure complète des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$ est présentée sur la figure Fig. A.1. Les énergies propres des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$ peuvent être évalués à l'aide des matrices présentées sur la figure Fig. A.2. Lorsque le moment de spin nucléaire I ou le moment total de spin J est différent de $1/2$, un terme d'interaction quadrupolaire électrique intervient dans la correction énergétique des niveaux d'énergies. Le spin nucléaire

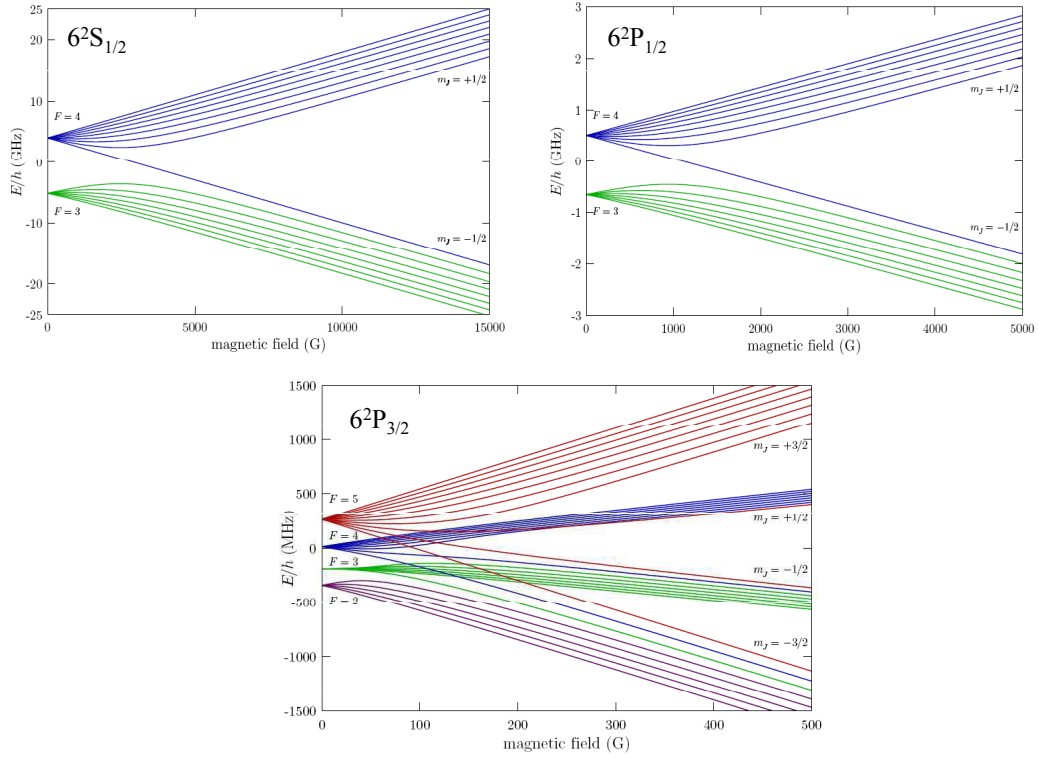


FIGURE A.3 – *Eclatement Zeeman des états $6^2S_{1/2}$, $6^2P_{1/2}$ et $6^2P_{3/2}$. Les figures sont extraites de la publication : Daniel A. Steck, "Cesium D Line Data," available online at <http://steck.us/alkalidata> (revision 2.1.4, 23 December 2010) de D. Steck.*

total interagit avec les gradients de champ électrique qui apparaissent lorsque la distribution de charges du nuage électronique est anisotrope autour du noyau atomique. Dans le cas du ^{133}Cs avec un spin nucléaire $I = 7/2$, le terme quadrupolaire électrique reste 100 fois inférieur au terme de couplage hyperfin et peut être raisonnablement négligé en champ faible pour l'état $6^2P_{3/2}$. On notera également que pour de petits champs magnétiques, le niveau hyperfin $F = 3$ de l'état excité $6^2P_{3/2}$ présente une très faible sensibilité au champ magnétique, environ 0.588 kHz/G contre plusieurs centaines de kHz/G pour les autres niveaux hyperfins. Cela s'explique par l'unique contribution du spin nucléaire puisque le terme proportionnel à $g_J\mu_B B$ s'annule pour $F = 3$ comme l'indique la formule Eq. A.4. La levée de dégénérescence des niveaux hyperfins en fonction du champ magnétique est présentée sur la figure Fig. A.3.

Les références :

1. E. Arimondo, M. Inguscio and P. Violino, "Experimental determinations of the hy-

définition	Quantité	Valeur
Constante hyperfine $6^2S_{1/2}$	$A(^2S_{1/2})$	h.2,298157943 (J.s×GHz)
$6^2P_{1/2}$	$A(^2P_{1/2})$	h.291,920(19) (J.s×MHz) [1, 2]
$6^2P_{3/2}$	$A(^2P_{3/2})$	h.50,275(3) (J.s×MHz) [1, 2]
Facteur de Landé $6^2S_{1/2}$	$g_J(^2S_{1/2})$	2,0025403(2) [1, 2]
$6^2P_{1/2}$	$g_J(^2P_{1/2})$	0,66590(9) [1, 2]
$6^2P_{3/2}$	$g_J(^2P_{3/2})$	1,3340(3) [1, 2]
Facteur de Landé nucléaire	g_I	$3,99885395(52) \times 10^{-4}$ [1, 2]
Magnéton de Bohr	μ_B	$927,400968(20) \times 10^{-26}$ J.T $^{-1}$ codata [2010]
Constante de Planck	$2\pi\hbar$	$6,62606957(29) \times 10^{-34}$ J.s codata [2010]

TABLE A.1 – Valeurs expérimentales pour l'état fondamental et l'état excité du ^{133}Cs .

- [perfine structure in the alkali atoms](#)", Rev. Mod. Phys. **49**, 31, (1977).
2. D. A. Steck, Alkaline D Line Data, <http://steck.us/alkalidata>
 3. B. Cagnac et J.-C. Pebay-Peyroula, "[Physique Atomique](#)", Dunod Université, (1975).
 4. N.F. Ramsey, "[Molecular beams](#)", Oxford at the Clarendon Press, (1956).
 5. J. Vanier and C. Audoin, "[The quantum Physics of Atomic Frequency Standards](#)", Adam Hilger, Bristol, (1989).

Annexe B

La structure atomique d'un alcalino-terreux : exemple du ^{87}Sr

Je présente dans cette annexe la construction de la matrice en énergie du strontium des états atomiques $^3P_0, ^3P_1, ^1P_1$ séparés de l'état fondamental 1S_0 . La figure Fig. B.1 contient les états d'énergie de structure fine qui se décomposent ensuite en niveaux hyperfins et magnétiques. On néglige ici le rôle de l'état 3P_2 . Les composantes des éléments de matrice sont établies à partir des travaux de A. Lurio, M. Mandel et R. Novick présentés dans la référence (LMN) Phys. Rev. A vol **126**, 1758 (1962) "[Second-order hyperfine and Zeeman corrections for an \(sl\) configuration](#)".

B.1 Structure magnétique de l'état 3P_0 en théorie des perturbations

La description de la transition d'horloge du strontium ^{87}Sr entre l'état fondamental 1S_0 et 3P_0 est effectuée dans la théorie du couplage intermédiaire développée par Breit et Wills et étendue de manière perturbative au couplage hyperfin du spin nucléaire sur les deux électrons de valence en configuration électronique (sp). On traite l'influence du champ magnétique du spin nucléaire sur l'état 3P_0 à l'aide des fonctions d'ondes atomiques développées en couplage (LS). On rappelle que les états d'énergie de structure fine sont écrits la forme d'une combinaison linéaire des états purs en couplage (LS) pondérés par des coefficients α, β tels que :

$$\begin{aligned} |^3P_1\rangle &= \alpha|^3P_1^{LS}\rangle + \beta|^1P_1^{LS}\rangle \\ |^1P_1\rangle &= \alpha|^1P_1^{LS}\rangle - \beta|^3P_1^{LS}\rangle \end{aligned} \tag{B.1}$$

On introduit de manière perturbative l'interaction hyperfine avec l'état 3P_0 sous la forme d'une nouvelle combinaison linéaire d'états purs :

$$|^3P_0\rangle = |^3P_0^{LS}\rangle + \alpha_0|^3P_1\rangle + \beta_0|^1P_1\rangle \tag{B.2}$$

Les coefficients de mélange hyperfins sont α_0, β_0 sont définis dans le chapitre I. On calcule, à l'aide du hamiltonien Zeeman H_z , l'influence du champ magnétique à partir des éléments de matrice exprimés dans la base des états propres $|^{2S+1}L_J, F, m_F\rangle$. On obtient les différents composantes de couplage Zeeman (avec la notation $F' = F, F \pm 1$) :

$$\begin{aligned}
 \langle {}^3P_0, F | H_z | {}^3P_0, F \rangle &= \langle {}^3P_0^{LS}, F | H_z | {}^3P_0^{LS}, F \rangle + 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F | H_z | {}^3P_0^{LS}, F \rangle \\
 &\quad + 2(\alpha_0\beta - \alpha\beta_0) \langle {}^1P_1^{LS}, F | H_z | {}^3P_0^{LS}, F \rangle \\
 \langle {}^3P_1, F' | H_z | {}^3P_1, F' \rangle &= \alpha^2 \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle + \beta^2 \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + 2\alpha\beta \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 \langle {}^1P_1, F' | H_z | {}^1P_1, F' \rangle &= \alpha^2 \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle + \beta^2 \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad - 2\alpha\beta \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 \langle {}^3P_1, F' | H_z | {}^3P_0, F \rangle &= \alpha \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_0^{LS}, F \rangle + \alpha(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + \alpha(\alpha_0\beta - \alpha\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + \beta(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + \beta(\alpha_0\beta - \alpha\beta_0) \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 \langle {}^3P_0, F | H_z | {}^1P_1, F' \rangle &= -\beta \langle {}^3P_0^{LS}, F | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle + \alpha \langle {}^3P_0^{LS}, F | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad - \beta(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + \alpha(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad - \beta(\alpha_0\beta - \alpha\beta_0) \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad + \alpha(\alpha_0\beta + \alpha\beta_0) \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 \langle {}^3P_1, F' | H_z | {}^1P_1, F' \rangle &= [\alpha^2 - \beta^2] \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle + \alpha\beta \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle \\
 &\quad - \alpha\beta \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle
 \end{aligned} \tag{B.3}$$

On rappelle également les règles de sélection en couplage pur de type (LS) :

$$\begin{aligned}
 \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle &= 0 \\
 \langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_0^{LS}, F' \rangle &= 0
 \end{aligned} \tag{B.4}$$

Si on néglige, dans l'équation Eq. B.3, les produits de la forme $\alpha_0\alpha, \alpha_0\beta, \beta\beta_0$, et que l'on utilise les règles de sélection appropriées Eq. B.4, on obtient les composantes Zeeman de la matrice nécessaire au calcul de l'interaction hyperfine avec l'état atomique 3P_0 . Les éléments de matrice qui nous intéressent sont fournis dans le tableau Tab. B.1. La matrice M_z des états ${}^1P_1, {}^3P_1, {}^3P_0$ incluant le couplage spin-orbite α, β et l'interaction hyperfine α_0, β_0 s'écrit :

$$M_z = \begin{pmatrix} \tilde{E}_{1P_1}^{LS} & M_{1P_1}^{3P_1}(\alpha\beta) & M_{1P_1}^{3P_0}(\beta) \\ M_{3P_1}^{1P_1}(\alpha\beta) & \tilde{E}_{3P_1}^{LS} & M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha) \\ M_{3P_0}^{1P_1}(\beta) & M_{3P_1}^{3P_0}(\alpha) & \tilde{E}_{3P_0}^{LS} \end{pmatrix} \tag{B.5}$$

pour 3P_0 :

$$\begin{aligned}
 \langle ^3P_0^{LS}, F=I | H_z | ^3P_0^{LS}, F=I \rangle &= -g_I m_F \mu_B B \\
 \langle ^3P_0^{LS}, F=I | H_z | ^3P_1^{LS}, F'=I \rangle &= (g_s - g_l) m_F \mu_B B \sqrt{\frac{2}{3I(I+1)}} \\
 \langle ^3P_0^{LS}, F=I | H_z | ^3P_1^{LS}, F'=I+1 \rangle &= (g_s - g_l) \mu_B B \sqrt{\frac{((I+1)^2 - m_F^2)(4I+6)}{3(I+1)(4(I^2+1)-1)}} \\
 \langle ^3P_0^{LS}, F=I | H_z | ^3P_1^{LS}, F'=I-1 \rangle &= (g_s - g_l) \mu_B B \sqrt{\frac{(I^2 - m_F^2)(4I-2)}{3I(4I^2-1)}}
 \end{aligned}$$

pour 3P_1 :

$$\begin{aligned}
 \langle ^3P_1^{LS}, F=I | H_z | ^3P_1^{LS}, F=I \rangle &= \left(\frac{g_l + g_s - g_I(2I(I+1)-2)}{2I(I+1)} \right) m_F \mu_B B \\
 \langle ^3P_1^{LS}, F=I+1 | H_z | ^3P_1^{LS}, F=I+1 \rangle &= \left(\frac{g_l + g_s - 2g_I I}{2(I+1)} \right) m_F \mu_B B \\
 \langle ^3P_1^{LS}, F=I-1 | H_z | ^3P_1^{LS}, F=I-1 \rangle &= \left(-\frac{g_l + g_s + 2g_I(I+1)}{2I} \right) m_F \mu_B B
 \end{aligned}$$

pour 1P_1 :

$$\begin{aligned}
 \langle ^1P_1^{LS}, F=I | H_z | ^1P_1^{LS}, F=I \rangle &= \left(\frac{g_l - g_I(I(I+1)-1)}{I(I+1)} \right) m_F \mu_B B \\
 \langle ^1P_1^{LS}, F=I+1 | H_z | ^1P_1^{LS}, F=I+1 \rangle &= \left(\frac{g_l - g_I I}{(I+1)} \right) m_F \mu_B B \\
 \langle ^1P_1^{LS}, F=I-1 | H_z | ^1P_1^{LS}, F=I-1 \rangle &= \left(-\frac{g_l + g_I(I+1)}{I} \right) m_F \mu_B B
 \end{aligned}$$

TABLE B.1 – Elements de matrice Zeeman pour les états ($^2S+1L_J$). Le spin nucléaire est noté I .

avec :

$$\begin{aligned}
 \tilde{E}_{^3P_0}^{LS} &= E_{^3P_0}^{LS} + Z_{^3P_0}^{LS} \\
 Z_{^3P_0}^{LS} &= \langle ^3P_0^{LS} | H_z | ^3P_0^{LS} \rangle - 2(\alpha\alpha_0 - \beta\beta_0) \langle ^3P_1^{LS}, F=I | H_z | ^3P_0^{LS} \rangle \\
 \tilde{E}_{^3P_1}^{LS} &= E_{^3P_1}^{LS} + Z_{^3P_1}^{LS} \\
 Z_{^3P_1}^{LS} &= \sum_{F'} (\alpha^2 \langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle + \beta^2 \langle ^1P_1^{LS}, F' | H_z | ^1P_1^{LS}, F' \rangle) \\
 \tilde{E}_{^1P_1}^{LS} &= E_{^1P_1}^{LS} + Z_{^1P_1}^{LS} \\
 Z_{^1P_1}^{LS} &= \sum_{F'} (\alpha^2 \langle ^1P_1^{LS}, F' | H_z | ^1P_1^{LS}, F' \rangle + \beta^2 \langle ^3P_1^{LS}, F' | H_z | ^3P_1^{LS}, F' \rangle)
 \end{aligned} \tag{B.6}$$

et la définition des éléments non diagonaux :

$$\begin{aligned} M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha) &= M_{3P_1}^{3P_0}(\alpha) = \alpha \sum_{F'} \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_0^{LS}, F \rangle \\ M_{3P_0}^{1P_1}(\beta) &= M_{1P_1}^{3P_0}(\beta) = -\beta \sum_{F'} \langle {}^3P_0^{LS}, F | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle \\ M_{3P_1}^{1P_1}(\alpha\beta) &= M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha) = \alpha\beta \sum_{F'} \alpha\beta (\langle {}^1P_1^{LS}, F' | H_z | {}^1P_1^{LS}, F' \rangle - \langle {}^3P_1^{LS}, F' | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle) \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

On peut maintenant calculer les valeurs propres de la matrice Eq. (B.5) afin d'évaluer la sensibilité de la transition d'horloge au champ magnétique. On écrit les solutions cubiques de l'équation séculaire sous la forme trigonométrique :

$$\begin{aligned} \nu_{m_F}^{\pm} &= \frac{\nu_0}{3} \mp \sqrt{\nu_0^2 + 3\nu_1^2} \times \cos \left[\frac{1}{3} \cos \left[\mp \frac{2\nu_0^3 + 9\nu_0\nu_1^2 + 27\nu_2^3}{2(\nu_0^2 + 3\nu_1^2)^{3/2}} \right]^{-1} \pm \frac{2\pi}{3} \right] \\ \nu_{m_F} &= \frac{\nu_0}{3} + \sqrt{\nu_0^2 + 3\nu_1^2} \times \cos \left[\frac{1}{3} \cos \left[\frac{2\nu_0^3 + 9\nu_0\nu_1^2 + 27\nu_2^3}{2(\nu_0^2 + 3\nu_1^2)^{3/2}} \right]^{-1} + \frac{2\pi}{3} \right] \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

avec

$$\begin{aligned} \nu_0 &= \tilde{E}_{3P_0}^{LS} + \tilde{E}_{3P_1}^{LS} + \tilde{E}_{1P_1}^{LS} \\ \nu_1 &= \left[-\tilde{E}_{3P_0} \tilde{E}_{3P_1} - \tilde{E}_{3P_1} \tilde{E}_{1P_1} - \tilde{E}_{3P_0} \tilde{E}_{1P_1} + M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha)^2 + M_{3P_0}^{1P_1}(\beta)^2 + M_{1P_1}^{3P_1}(\alpha\beta)^2 \right]^{1/2} \\ \nu_2 &= \left[\tilde{E}_{3P_0}^{LS} \tilde{E}_{3P_1}^{LS} \tilde{E}_{1P_1}^{LS} - \tilde{E}_{3P_0} M_{1P_1}^{3P_1}(\alpha\beta)^2 - \tilde{E}_{3P_1}^{LS} M_{3P_0}^{1P_1}(\beta)^2 - \tilde{E}_{1P_1}^{LS} M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha)^2 \right. \\ &\quad \left. + 2M_{3P_0}^{3P_1}(\alpha) M_{3P_0}^{1P_1}(\beta) M_{1P_1}^{3P_1}(\alpha\beta) \right]^{1/3} \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

Toutefois comme les éléments proportionnels à β et $\alpha\beta$ sont très petits ($\sim 10^{-6}$), on peut évaluer l'influence du spin nucléaire uniquement entre 3P_1 et 3P_0 . La valeur propre en énergie de 3P_0 is finalement exprimée sous une forme similaire à la solution de Breit-Rabi (voir le chapitre I) :

$$E_{3P_0, m_F} = \frac{1}{2} \left[(\tilde{E}_{3P_0}^{LS} + \tilde{E}_{3P_1}^{LS}) + (\tilde{E}_{3P_0}^{LS} - \tilde{E}_{3P_1}^{LS}) \sqrt{1 + 4 \frac{\sum_{F'} \alpha^2 |\langle {}^3P_0^{LS}, F | H_z | {}^3P_1^{LS}, F' \rangle|^2}{(\tilde{E}_{3P_0}^{LS} - \tilde{E}_{3P_1}^{LS})^2}} \right] \quad (\text{B.10})$$

$ ^1P_1, F-1, m_F\rangle$	$ ^1P_1, F, m_F\rangle$	$ ^1P_1, F+1, m_F\rangle$	$ ^3P_1, F-1, m_F\rangle$	$ ^3P_1, F, m_F\rangle$	$ ^3P_1, F+1, m_F\rangle$	$ ^3P_0, F, m_F\rangle$	
$E^{LS, ^1P_1}, A(^1P_1), Q(^1P_1), \mu_B B$	$\theta_{1P1}^1(\mu_B B)$	0	$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	$\alpha_1\beta_1(\mu_B B)$	0	$\beta_1(\mu_B B)$	$ ^1P_1, F-1, m_F\rangle$
$\theta_{1P1}^1(\mu_B B)$	$E^{LS, ^1P_1}, A(^1P_1), Q(^1P_1), \mu_B B$	$\theta_{1P1}^2(\mu_B B)$	$\alpha_1\beta_1(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	$\alpha_2\beta_2(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_0), Q(^1P_1-^3P_0), \mu_B B$	$ ^1P_1, F, m_F\rangle$
0	$\theta_{1P1}^2(\mu_B B)$	$E^{LS, ^1P_1}, A(^1P_1), Q(^1P_1), \mu_B B$	0	$\alpha_2\beta_2(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	$\beta_2(\mu_B B)$	$ ^1P_1, F+1, m_F\rangle$
$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	$\alpha_1\beta_1(\mu_B B)$	0	$E^{LS, ^3P_1}, A(^3P_1), Q(^3P_1), \mu_B B$	$\theta_{3P1}^1(\mu_B B)$	0	$\alpha_1(\mu_B B)$	$ ^3P_1, F-1, m_F\rangle$
$\alpha_1\beta_1(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	$\alpha_2\beta_2(\mu_B B)$	$\theta_{3P1}^1(\mu_B B)$	$E^{LS, ^3P_1}, A(^3P_1), Q(^3P_1), \mu_B B$	$\theta_{3P1}^2(\mu_B B)$	$A(^3P_1-^3P_0), Q(^3P_1-^3P_0), \mu_B B$	$ ^3P_1, F, m_F\rangle$
0	$\alpha_2\beta_2(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_1), Q(^1P_1-^3P_1), \mu_B B$	0	$\theta_{3P1}^2(\mu_B B)$	$E^{LS, ^3P_1}, A(^3P_1), Q(^3P_1), \mu_B B$	$\alpha_2(\mu_B B)$	$ ^3P_1, F+1, m_F\rangle$
$\beta_1(\mu_B B)$	$A(^1P_1-^3P_0), Q(^1P_1-^3P_0), \mu_B B$	$\beta_2(\mu_B B)$	$\alpha_1(\mu_B B)$	$A(^3P_1-^3P_0), Q(^3P_1-^3P_0), \mu_B B$	$\alpha_2(\mu_B B)$	$E^{LS, ^3P_0}, \mu_B B$	$ ^3P_0, F, m_F\rangle$

FIGURE B.1 – Structure fine, hyperfine et magnétique des états $^3P_0, ^3P_1, ^1P_1$ dans la base $|F, m_F\rangle$ de l'atome de strontium ^{87}Sr . Chaque élément de matrice contient des termes proportionnels au couplage hyperfin $A(^{2S+1}L_J)$, au terme d'interaction quadrupolaire $Q(^{2S+1}L_J)$ et au terme d'interaction magnétique $\mu_B B$. Les composantes sont définies dans le texte. Les états d'énergie de structure fine sont indiqués par $E_{1P_1}^{LS}, E_{3P_1}^{LS}, E_{3P_0}^{LS}$.

B.2 Traitement non perturbatif de la structure atomique d'une configuration (sl) en couplage intermédiaire

Afin de s'assurer qu'il n'y a pas d'autres couplages parasites sur l'état 3P_0 , j'ai effectué un calcul détaillé de la structure hyperfine et magnétique du strontium ^{87}Sr à partir des travaux de A. Lurio, M. Mandel et R. Novick présentés dans la référence (LMN) Phys. Rev. A vol **126**, 1758 (1962).

On se place dans une configuration électronique de l'atome comprenant un électron de moment cinétique orbital $l = 0$ et un électron de moment cinétique orbital arbitraire l . On rappelle que l'intensité du couplage spin-orbite peut être traitée de manière intermédiaire entre une interaction forte entre les deux électrons externes prédominante par rapport à l'interaction des électrons avec le noyau atomique (on parle de couplage (LS)) et une

interaction faible entre électrons en supposant que c'est l'interaction individuelle de chaque électron avec le champ électrostatique généré par le noyau atomique qui est importante (on parle alors de couplage (jj)). Dans une théorie atomique du couplage intermédiaire, on peut choisir l'une ou l'autre base des états propres correspondant au point de vue dans lequel on souhaite se placer. J'introduis ici les relations qui existent entre la base des états propres du couplage (LS) et la base des états propres du couplage(jj) rappelées dans la référence (LMN). En couplage (LS), la base est définie par un ket noté $|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}\rangle$ comprenant les états de structure fine $|^3L_{l+1}\rangle$, $|^3L_l\rangle$, $|^3P_{l-1}\rangle$ et $|^1L_l\rangle$. En couplage (jj), les états propres $|j_1, j_2, J\rangle$ sont notés avec les règles d'addition des moments qui conduisent aux kets notés $|\frac{1}{2}, l - \frac{1}{2}, l\rangle$, $|\frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}, l\rangle$, $|\frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}, l + 1\rangle$ et $|\frac{1}{2}, l - \frac{1}{2}, l - 1\rangle$.

En faisant intervenir les coefficients de mélange α, β (LS) et c_1, c_2 (jj), on obtient les correspondances suivantes :

$$\begin{aligned} |^3L_{l-1}\rangle &= |^3L_{l-1}^{LS}\rangle = |\frac{1}{2}, l - \frac{1}{2}, l - 1\rangle \\ |^3L_l\rangle &= \alpha|^3L_l^{LS}\rangle + \beta|^1L_l^{LS}\rangle = c_1|\frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}, l\rangle + c_2|\frac{1}{2}, l - \frac{1}{2}, l\rangle \\ |^3L_{l+1}\rangle &= |^3L_{l+1}^{LS}\rangle = |\frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}, l + 1\rangle \\ |^1L_l\rangle &= \alpha|^1L_l^{LS}\rangle - \beta|^3L_l^{LS}\rangle = c_2|\frac{1}{2}, l + \frac{1}{2}, l\rangle - c_1|\frac{1}{2}, l - \frac{1}{2}, l\rangle \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

Les coefficient α, β et c_1, c_2 vérifient les relations d'orthogonalité de normalisation entre les états $|^3L_l\rangle$ et $|^1L_l\rangle$. Ces mêmes coefficients sont reliés entre eux par :

$$\alpha = c_1\sqrt{\frac{l}{2l+1}} + c_2\sqrt{\frac{l+1}{2l+1}} \quad \beta = c_1\sqrt{\frac{l+1}{2l+1}} - c_2\sqrt{\frac{l}{2l+1}} \quad (\text{B.12})$$

On détermine par exemple α, β à partir de la mesure expérimentale des durées de vie des états excités $|^3L_l\rangle$ et $|^1L_l\rangle$ puis on remonte ensuite aux valeurs des coefficients c_1, c_2 .

Nous allons maintenant expliciter ce que contient l'hamiltonien de l'atome plongé dans un champ magnétique en couplage (LS) dans la base $|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle$ en développant l'expression des constantes d'interaction hyperfine de type dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique puis en ajoutant l'interaction magnétique.

B.2.1 Hamiltonien hyperfin et magnétique

Le hamiltonien hyperfin d'interaction (LMN) inclut un terme de couplage dipolaire magnétique, un terme quadrupolaire électrique et l'interaction magnétique. Il s'écrit dans

la base $|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle$ de la manière suivante :

$$\begin{aligned}
 H|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_f\rangle = \\
 (H_A + H_Q)|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_f\rangle + H_Z|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_f\rangle = \\
 A(^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1})\frac{K_F}{2}|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle \\
 + Q(^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1})\frac{\frac{3}{4}K_F(K_F+1) - \frac{4}{3}J(J+1)I(I+1)}{2IJ(2J-1)(2I-1)}|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle \\
 + g_J\mu_B B m_F \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)}|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle \\
 - g_I\mu_B B m_F \frac{F(F+1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)}|^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F, m_F\rangle \\
 - (g_J + g_I)\bar{F}_+ \mu_B B / \hbar |^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F+1, m_F\rangle \\
 - (g_J + g_I)\bar{F}_- \mu_B B / \hbar |^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1}, F-1, m_F\rangle
 \end{aligned} \tag{B.13}$$

en introduisant la définition $K_F = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$. Les composantes \bar{F}_+ et \bar{F}_- sont définies par les relations :

$$\begin{aligned}
 \bar{F}_+ &= \hbar \sqrt{\frac{(F+1)^2 - m_f^2((I+J+1)^2 - (F+1)^2)((F+1)^2 - (J-I)^2)}{4(F+1)^2(4(F+1)^2 - 1)}} \\
 \bar{F}_- &= \hbar \sqrt{\frac{(F^2 - m_f^2)((I+J+1)^2 - F^2)(F^2 - (J-I)^2)}{4F^2(4F^2 - 1)}}
 \end{aligned} \tag{B.14}$$

B.2.2 Composantes hyperfines

Les éléments de couplage diagonaux et non-diagonaux de type dipolaire magnétique $A(^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1})$ et quadrupolaire électrique $Q(^{2S+1}L_{J=l,l\pm 1})$ sont calculés en couplage (jj) puis obtenus en couplage intermédiaire à l'aide de la transformation donnée par l'équation Eq. B.11. Pour les états $^3L_{l-1}$, 3L_l , $^3L_{l+1}$ et 1L_l :

– composantes H_A diagonales :

$$\begin{aligned}
 \langle ^3L_{l+1}, F, m_F | H_A | ^3L_{l+1}, F, m_F \rangle &= \frac{K_F}{2} \left\{ \frac{1}{2l+2} a_s + \frac{2l+1}{2l+2} a_{l+1/2} \right\} \\
 \langle ^1L_{l-1}, F, m_F | H_A | ^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \frac{K_F}{2} \left\{ -\frac{1}{2l} a_s + \frac{2l+1}{2l} a_{l-1/2} \right\} \\
 \langle ^3L_l, F, m_F | H_A | ^3L_l, F, m_F \rangle &= \frac{K_F}{2} \left\{ \left(\frac{c_2^2}{2l} - \frac{c_1^2}{2l+2} \right) a_s + c_2^2 \left(\frac{2l-1}{2l} \right) a_{l-1/2} \right. \\
 &\quad \left. + \left(c_1^2 \frac{2l+3}{2l+2} - 2c_1 c_2 \frac{2l+3}{\sqrt{2l(2l+2)}} \xi \right) a_{l+1/2} \right\} \\
 \langle ^1L_l, F, m_F | H_A | ^1L_l, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1
 \end{aligned} \tag{B.15}$$

– composantes H_A non-diagonales :

$$\begin{aligned}
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_A | {}^3L_l, F, m_F \rangle &= \sqrt{[(l+1)^2 - (F-I)^2][(F+I+1)^2 - (l+1)^2]} \\
 &\quad \times \frac{1}{2(2l+2)} \left\{ c_1 a_s - \left[c_1 + c_2 \frac{(2l+3)\xi}{2\sqrt{2l(2l+2)}} \right] a_{l+1/2} \right\} \\
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_A | {}^1L_l, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1 \\
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_A | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= 0 \\
 \langle {}^3L_l, F, m_F | H_A | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \sqrt{[l^2 - (F-I)^2][(F+I+1)^2 - l^2]} \\
 &\quad \times \frac{1}{2(2l)} \left\{ c_2(a_s - a_{l-1/2}) - c_1 \frac{2l+3}{2\sqrt{2l(2l+2)}} \xi a_{l+1/2} \right\} \\
 \langle {}^1L_l, F, m_F | H_A | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1 \\
 \langle {}^3L_l, F, m_F | H_A | {}^1L_l, F, m_F \rangle &= \frac{K_F}{2} \left\{ -c_1 c_2 \left(\frac{1}{2l+2} + \frac{1}{2l} \right) a_s \right. \\
 &\quad \left. + \frac{2l+3}{2l+2} \left[c_1 c_2 + \frac{(c_1^2 - c_2^2)\xi}{2l\sqrt{2l(2l+2)}} \right] a_{l+1/2} - \left(\frac{2l-1}{2l} \right) c_1 c_2 a_{l-1/2} \right\} \\
 &\hspace{15em} \text{(B.16)}
 \end{aligned}$$

– composantes H_Q diagonales :

$$\begin{aligned}
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_Q | {}^3L_{l+1}, F, m_F \rangle &= \frac{3}{2} \left\{ \frac{K_F(K_F+1) - \frac{4}{3}(l+1)(l+2)I(I+1)}{2I(2I-1)(2l+2)(2l+1)} \right\} b_{l+1/2} \\
 \langle {}^1L_{l-1}, F, m_F | H_Q | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \frac{3}{2} \left\{ \frac{K_F(K_F+1) - \frac{4}{3}l(l-1)I(I+1)}{2I(2I-1)(2l-2)(2l-3)} \right\} \left\{ \frac{(2l+2)(2l-3)}{2l(2l-1)} b_{l-1/2} \right\} \\
 \langle {}^3L_l, F, m_F | H_Q | {}^3L_l, F, m_F \rangle &= \frac{3}{2} \left\{ \frac{K_F(K_F+1) - \frac{4}{3}l(l+1)I(I+1)}{2I(2I-1)(2l)(2l-1)} \right\} \\
 &\quad \times \left\{ \frac{1}{2l+1} \left[c_1^2 \frac{(2l-1)(2l+4)}{2l+2} - \frac{12c_1 c_2 \eta}{\sqrt{2l(2l+2)}} \right] b_{l+1/2} + c_2^2 b_{l-1/2} \right\} \\
 \langle {}^1L_l, F, m_F | H_Q | {}^1L_l, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1 \\
 &\hspace{15em} \text{(B.17)}
 \end{aligned}$$

– composantes H_Q non-diagonales :

$$\begin{aligned}
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_Q | {}^3L_l, F, m_F \rangle &= (-) \sqrt{[(F+I+1)^2 - (l+1)^2][(l+1)^2 - (F-I)^2]} \\
 &\quad \times \frac{3[F(F+1) - I(I+1) - l(l+2)]}{2I(2I-1)2l(2l+1)(2l+2)} \left\{ c_1 + c_2 \eta \left(\frac{2l+2}{2l} \right)^{1/2} \right\} b_{l+1/2} \\
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_Q | {}^1L_l, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1 \\
 \langle {}^3L_{l+1}, F, m_F | H_Q | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \sqrt{[I^2 - (F-l)^2][(l+1)^2 - (F-I)^2]} \\
 &\quad \times \frac{3\sqrt{[(F+I+1)^2 - l^2][(F+l+1)^2 - (I+1)^2]}}{2I(2I-1)(2l-1)2l(2l+1)} \frac{\eta b_{l+1/2}}{\sqrt{2l(2l+2)}} \\
 \langle {}^3L_l, F, m_F | H_Q | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= (-) \frac{3[F(F+1) - I(I+1) - (l+1)(l-1)]}{2I(2I-1)(2l-1)2l(2l+1)} \\
 &\quad \times \sqrt{[l^2 - (F-I)^2][(F+I+1)^2 - l^2]} \\
 &\quad \times \left\{ c_1 \frac{2l+3}{\sqrt{2l(2l+2)}} \eta b_{l+1/2} + c_2 \frac{2l+1}{2l-2} b_{l-1/2} \right\} \\
 \langle {}^1L_l, F, m_F | H_Q | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle &= \text{idem mais avec } c_1 \rightarrow c_2 \text{ et } c_2 \rightarrow -c_1 \\
 \langle {}^1L_l, F, m_F | H_Q | {}^3L_l, F, m_F \rangle &= \frac{3}{2} \frac{K_F(K_F+1) - \frac{4}{3}l(l+1)I(I+1)}{2I(2I-1)2l(2l-1)} \\
 &\quad \times \left\{ \frac{1}{2l+1} \left[c_1 c_2 \frac{(2l-1)(2l+4)}{2l+2} \right. \right. \\
 &\quad \left. \left. + 6(c_1^2 - c_2^2) \frac{\eta}{\sqrt{2l(2l+2)}} \right] b_{l+1/2} - c_1 c_2 b_{l-1/2} \right\}
 \end{aligned} \tag{B.18}$$

B.2.3 Composantes magnétiques

Les éléments d'interaction magnétique diagonaux et non-diagonaux s'écrivent :

– composantes H_Z dans la base des états propres $|^{2S+1}L_{J=l,\pm 1}\rangle$:

$$\begin{aligned}
 & \langle ^{2S+1}L_J, F, m_F | H_z | ^{2S+1}L_J, F, m_F \rangle = \\
 & \mu_B B m_F \left[g'_J \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)} - g_I \frac{F(F-1) + I(I+1) - J(J+1)}{2F(F+1)} \right] \\
 & \langle ^{2S+1}L_J, F-1, m_F | H_z | ^{2S+1}L_J, F, m_F \rangle \equiv \theta_{2S+1 L_J}^1 (\mu_B B) = \\
 & - (g'_J + g_I) m_F \mu_B B \sqrt{\frac{(F^2 - m_F^2)}{4F^2}} \times \sqrt{\frac{((I+J+1)^2 - F^2)(F^2 - (J-I)^2)}{4F^2 - 1}} \\
 & \langle ^{2S+1}L_J, F+1, m_F | H_z | ^{2S+1}L_J, F, m_F \rangle \equiv \theta_{2S+1 L_J}^2 (\mu_B B) = \\
 & - (g'_J + g_I) m_F \mu_B B \sqrt{\frac{((F+1)^2 - m_F^2)}{4(F+1)^2}} \times \sqrt{\frac{((I+J+1)^2 - (F+1)^2)((F+1)^2 - (J-I)^2)}{4(F+1)^2 - 1}}
 \end{aligned} \tag{B.19}$$

– composantes H_Z dans la base des états propres $|^3L_{l,\pm 1}\rangle, |^1L_l\rangle$ avec $F' = F, F \pm 1$:

$$\begin{aligned}
 & \langle ^1L_1, F', m_F | H_z | ^1L_3, F', m_F \rangle = \\
 & - \alpha \beta (g_S - g_L) m_F \mu_B B \frac{F(F+1) + l(l+1) - I(I+1)}{l(l+1)2F(F+1)} \\
 & \langle ^1L_l, F-1, m_F | H_z | ^3L_l, F, m_F \rangle \equiv \alpha_1 \beta_1 (\mu_B B) = \\
 & \alpha \beta (g_S - g_L) m_F \mu_B B \frac{\sqrt{F^2 - m_F^2}}{l(l+1)2F} \times \sqrt{\frac{((I+l+1)^2 - (F)^2)(F^2 - (l-I)^2)}{(4F^2 - 1)}} \\
 & \langle ^1L_l, F+1, m_F | H_z | ^3L_l, F, m_F \rangle \equiv \alpha_2 \beta_2 (\mu_B B) = \\
 & \alpha \beta (g_S - g_L) m_F \mu_B B \frac{\sqrt{(F+1)^2 - m_F^2}}{l(l+1)2(F+1)} \times \sqrt{\frac{((I+l+1)^2 - (F+1)^2)((F+1)^2 - (l-I)^2)}{(4(F+1)^2 - 1)}} \\
 & \langle ^1L_l, F-1, m_F | H_z | ^3L_{l-1}, F, m_F \rangle \equiv \beta_1 (\mu_B B) = \\
 & - (g_S - g_L) (-\beta) m_F \mu_B B \frac{\sqrt{F^2 - m_F^2}}{4JF} \\
 & \times \sqrt{\frac{((I+1)^2 - (J-F)^2)(I^2 - (F-J)^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(4F^2 - 1)(4J^2 - 1)}} \\
 & \langle ^1L_1, F+1 | H_z | ^3L_{l-1}, F+1 \rangle \equiv \beta_2 (\mu_B B) = \\
 & (g_S - g_L) (-\beta) m_F \mu_B B \frac{\sqrt{F^2 - m_F^2}}{4JF} \\
 & \times \sqrt{\frac{((J+F)^2 - (I+1)^2)((J+F)^2 - I^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(4F^2 - 1)(4J^2 - 1)}}
 \end{aligned} \tag{B.20}$$

$$\begin{aligned}
 \langle {}^1L_l, F | H_z | {}^3L_{l-1}, F \rangle = & \\
 (g_S - g_L)(-\beta)m_F\mu_B B \frac{1}{4F(F+1)} & \\
 \times \sqrt{\frac{((I+F+1)^2 - J^2)(J^2 - (I-F)^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(J^2(4J^2 - 1))}} & \\
 \langle {}^3L_l, F-1, m_F | H_z | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle \equiv \alpha_1(\mu_B B) = & \\
 -\alpha(g_S - g_L)m_F\mu_B B \frac{\sqrt{F^2 - m_F^2}}{4JF} & \\
 \times \sqrt{\frac{((I+1)^2 - (J-F)^2)(I^2 - (F-J)^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(4F^2 - 1)(4J^2 - 1)}} & \\
 \langle {}^3L_l, F+1, m_F | H_z | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle \equiv \alpha_2(\mu_B B) = & \\
 \alpha(g_S - g_L)m_F\mu_B B \frac{\sqrt{F^2 - m_F^2}}{4JF} & \\
 \times \sqrt{\frac{((J+F)^2 - (I+1)^2)((J+F)^2 - I^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(4F^2 - 1)(4J^2 - 1)}} & \\
 \langle {}^3L_l, F, m_F | H_z | {}^3L_{l-1}, F, m_F \rangle = & \\
 \alpha(g_S - g_L)m_F\mu_B B \frac{1}{4F(F+1)} & \\
 \times \sqrt{\frac{((I+F+1)^2 - J^2)(J^2 - (I-F)^2)(J^2 - (l-1)^2)((l+2)^2 - J^2)}{(J^2(4J^2 - 1))}} &
 \end{aligned} \tag{B.21}$$

Les définitions des facteurs de Landé sont :

$$\begin{aligned}
 g'_J({}^3L_{l+1}) &= g_J({}^3L_{l+1}^{LS}) \\
 g'_J({}^3L_{l-1}) &= g_J({}^3L_{l-1}^{LS}) \\
 g'_J({}^3L_l) &= \alpha^2 g_J({}^3L_l^{LS}) + \beta^2 g_J({}^1L_l^{LS}) \\
 g'_J({}^1L_l) &= \alpha^2 g_J({}^1L_l^{LS}) + \beta^2 g_J({}^3L_l^{LS}) \\
 g_J({}^{2S+1}L_J^{LS}) &= g_L \frac{J(J+1) - S(S+1) + L(L+1)}{2J(J+1)} + g_S \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)}
 \end{aligned} \tag{B.22}$$

B.2.4 Structure hyperfine et magnétique des états 3P_1 , 1P_1 et 3P_2

Afin de modéliser l'éclatement Zeeman des états 3P_1 et 1P_1 , on prend en compte l'influence du couplage quadrupolaire électrique. Celui-ci est non-diagonal dans la base $\{|I, J, m_I, m_J\rangle\}$ alors qu'il le devient dans la base $\{|I, J, F', m_F\rangle\}$. Il faut donc retenir l'expression de la matrice d'interaction magnétique dans cette dernière base. La figure Fig. B.2 présente les niveaux hyperfins et l'éclatement Zeeman des états excités 3P_1 et 3P_2 en fonction de l'amplitude du champ magnétique statique. Le modèle en couplage intermédiaire montre que le terme d'interaction quadrupolaire ne modifie absolument pas

définition	Quantité	valeur
coefficients de mélange (LS)	α	0,9996
	β	-0,0286
coefficients de mélange (jj)	c_1	0,5538
	c_2	0,8326
corrections relativistes	ξ	1,018
	η	1,044
constante hyperfine	a_s	-768 MHz
	$a_{1/2}$	-116 MHz
	$a_{3/2}$	-24,8 MHz
constante quadrupolaire	$b_{1/2}$	0
	$b_{3/2}$	-67,3 MHz
Energies de structure fine	$E_{^3P_0}^{LS}$	0
	$E_{^3P_1}^{LS}$	5600 GHz
	$E_{^1P_1}^{LS}$	221275 GHz

TABLE B.2 – Valeurs utilisées pour simuler la structure hyperfine et magnétique du strontium.

de façon significative les écarts hyperfins et l'éclatement Zeeman des niveaux 3P_1 et 3P_2 mais est essentiel pour l'état 1P_1 puisque la présence du terme quadrupolaire inverse la position en énergie des niveaux hyperfins $F = 9/2$ et $F = 11/2$ comme le prouve la figure Fig. B.3. Le calcul détaillé des états de structure fine et des niveaux hyperfins est réalisé à partir de l'ensemble des éléments de matrice présentés dans les paragraphes précédents. Les valeurs expérimentales utilisées pour calculer la sensibilité au champ magnétique de l'état 3P_0 sont rapportées dans le tableau Tab. B.2. Ces valeurs sont reprises des travaux présentés par M.M. Boyd ("[High precision spectroscopy of strontium in an optical lattice : towards a new standard for frequency and time](#)", thèse de l'Université du Colorado) au cours de mon séjour postdoctoral au JILA dans le groupe des horloges optiques de Jun Ye.

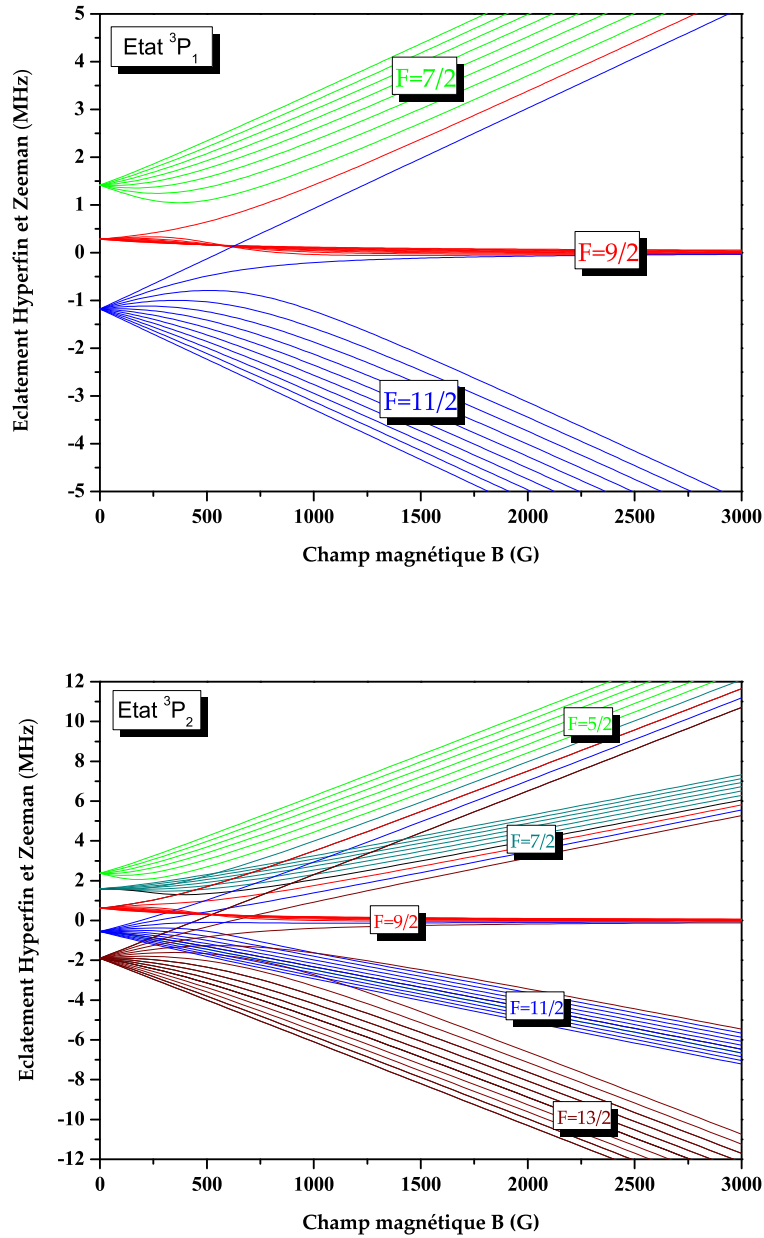


FIGURE B.2 – Eclatement Zeeman des niveaux hyperfins de l'état excité 3P_1 et de l'état 3P_2 . On a utilisé $A(^3P_1) = -260$ MHz, $A(^3P_2) = -212$ MHz, $Q(^3P_1) = -35$ MHz et $Q(^3P_2) = 67$ MHz.

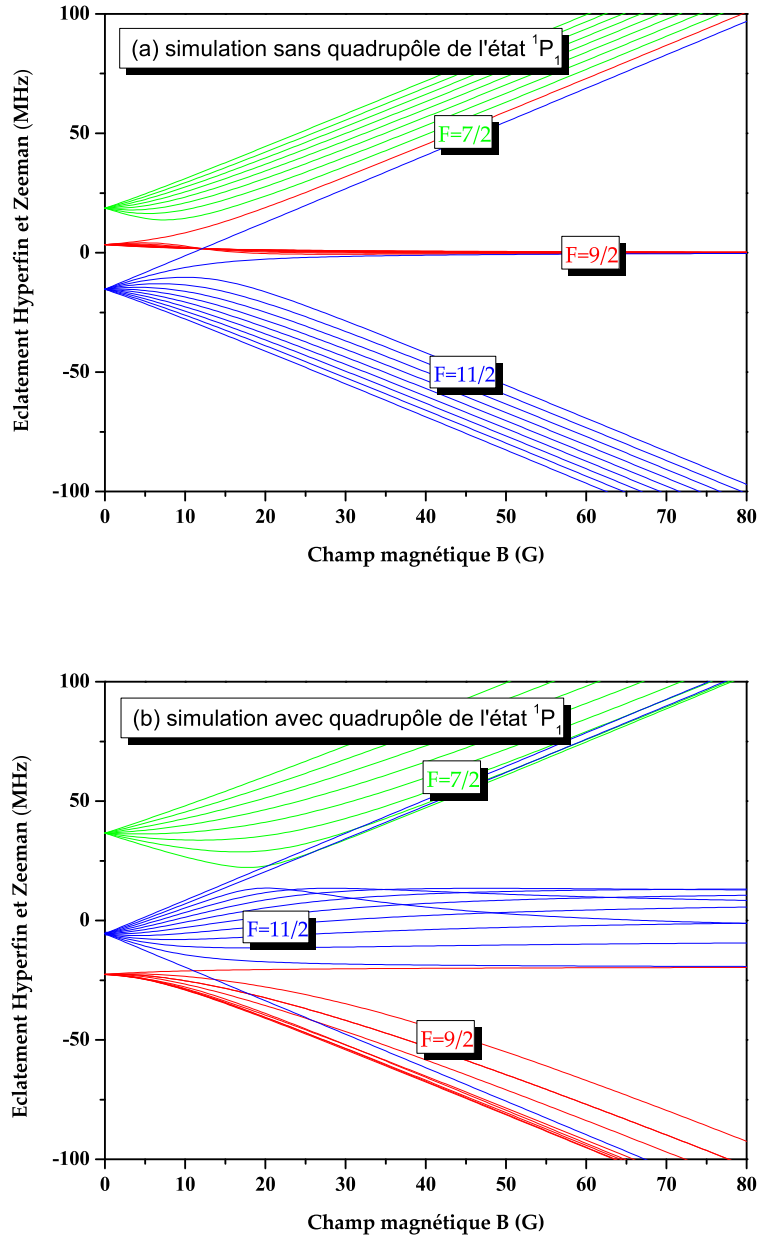


FIGURE B.3 – Eclatement Zeeman des niveaux hyperfins de l'état excité 1P_1 (a) en absence de quadrupôle et (b) avec la présence du terme quadrupolaire. On a utilisé $A(^1P_1) = -3.4$ MHz et $Q(^1P_1) = 39$ MHz.

Troisième partie

CURRICULUM VITAE

CURRICULUM VITAE

Thomas Zanon-Willette

Domicile : 59, rue Eugène Carrière, Paris
75018 Paris

Laboratoire : LPMAA CNRS-UMR 7092

Tour 32-33, 2ième étage UPMC
04 place Jussieu case 76, 75005 Paris

Née le 11 Novembre 1976

Nationalité française

Tél. : (+33) (0)6 31 79 23 68 (portable)
et (+33) (0)1 40 27 69 71 (bureau)

Email : thomas.zanon@upmc.fr

Situation professionnelle

- 2011 –** **Maître de conférences à l'Université Pierre et Marie Curie (UPMC) au LPMAA.**
▷ *Activités de recherche en spectroscopie atomique et moléculaire pour l'Astrophysique et l'Atmosphère. Porteur d'une nouvelle thématique sur la "métrologie" des fréquences moléculaires à travers le développement d'un spectromètre laser IR à très haute résolution spectrale en fréquence asservi sur un laser femto-seconde ultra-stable.*

Parcours professionnel

- 2010 – 2011** **LPMAA-UPMC**, Université Pierre et Marie Curie UPMC.
Position postdoctorale du CNRS.
▷ *Activités de recherche sur les molécules d'intérêt atmosphérique et environnemental (O_3 , CO_2) par spectroscopie laser IR à haute résolution spectrale. Développement instrumental d'appareils de mesure de précision.*
- 2008 – 2010** **INM-CNAM**, Institut National de Métrologie et Conservatoire National des Arts et Métiers.
Position postdoctorale du LNE.
▷ *Développement de dispositifs optiques type oscillateur paramétrique optique pour la spectroscopie moléculaire (CH_4 , CH_2O) destinée à la radiométrie et l'analyse du souffle humain. Projet supporté par la CEE à travers le programme Euramet-IMERA.*
- 2007 – 2008** **LPL**, laboratoire de Physique des Lasers à l'Institut Galilée, Université Paris 13.
Position d'attaché temporaire enseignement-recherche ATER.
▷ *Enseignement auprès des étudiants de Licence et de Master. Recherches sur les gaz quantiques dégénérés et études d'un condensat de Bose-Einstein du chrome ^{52}Cr .*
- 2005 – 2007** **JILA-NIST**, Boulder Université du Colorado, USA.
Position postdoctorale DGA.
▷ *Etude et réalisation d'un nouveau prototype d'horloge à atomes froids de ^{88}Sr à résonance noire optique. Projet supporté par la Direction Générale de l'Armement (DGA) puis l'Université du Colorado.*

Formation universitaire

- 2001 – 2005** **SYRTE**, Observatoire de Paris.
Doctorat de l'UPMC (directeurs : N. Dimarcq et A. Clairon).
▷ *Etudes théorique et expérimentale d'une horloge atomique de ^{133}Cs à piégeage cohérent de population en régime continu et impulsif (lien <http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00123499/>). Bourse MENRT avec l'école doctorale ED-389.*
- 2000 – 2001** **UPMC**.
DEA de 3ème cycle : Physique et technologie des grands instruments.
- 1999 – 2000** **UPMC**.
Maîtrise de Physique Fondamentale de l'UPMC.

Enseignement universitaire

- Licence (L1) Parcours Biologie-Géologie-Physique-Chimie (responsable E. Duprat) : outils mathématiques pour la physique (LM130) avec des TDs sur les nombres complexes, le calcul algébrique et vectoriel, différentielles, dérivées et études de fonctions.
- Licence (L1) parcours MIME section PEIP : Mécanique classique du point (LP111)(responsable M. Glass-Maujean puis S. Moulinet) avec des TDs et TP en statique et dynamique des fluides, cinématique cartésienne, coordonnées cylindriques et sphériques, hydrodynamique, frottements, oscillateurs, conservation de l'énergie.
- Licence (L1) Sciences-Po : méthodes de calcul et statistiques (LM100) avec des TDs en Algèbre matricielle, systèmes d'équations linéaires, probabilités.
- Licence (L2) Parcours Physique Fondamentale (responsable N. Treps) avec des TDs en Relativité restreinte, des TP de physique atomique et des TDs en introduction à la mécanique quantique (LP216).
- Encadrement complet d'un mois en 2012 d'un étudiant stagiaire de licence L2 (S. Almonacil) avec la réalisation d'un rapport de stage expérimental sur le spectromètre laser transportable SIMCO pour la mesure du CO_2 atmosphérique et le rapport isotopique $\text{C}^{13}/\text{C}^{12}$.
▷ *Rapport : Mesure préliminaire de la concentration en CO_2 sur le site de Jussieu par spectrométrie moléculaire IR.*
- Encadrement complet d'un mois en 2011 d'une étudiante stagiaire de licence L2 (J. Tav) avec la réalisation d'un rapport de stage expérimental sur le spectromètre laser transportable SIMCO.
▷ *Rapport : Approche de la spectroscopie laser infrarouge appliquée à une molécule d'intérêt atmosphérique : le CO_2 .*
- Encadrement en 2006 pendant plusieurs semaines d'étudiants américains de niveau licence (L3) sur des petits projets expérimentaux universitaires.
▷ *Refroidissement d'atomes par laser, méthode de l'absorption saturée.*

Compétences techniques

Physique atomique / développement de nouveaux appareils de spectroscopie haute résolution.

Instrumentation / Electronique d'asservissement de sources laser.

Simulations MATHEMATICA, logiciel d'instrumentation LABVIEW.

▷ *Méthodes analytiques et numériques avec la matrice densité, méthode numérique de la fraction continue.* ▷ *Electromagnétisme, hyper-fréquence, optique THz.* ▷ *Métrologie des fréquences, calibration de capteurs sur un point de référence (point triple de l'eau).*

Responsabilités d'encadrement de doctorants

- 2008 – 2010**
- Co-encadrement, avec le directeur de thèse J.J. Zondy, pendant 2 ans de 2 doctorants (E. Andrieux et A. Rihan) à l'INM sur les montage optiques expérimentaux de 2 oscillateurs paramétriques optiques (OPO) simplement et doublement résonants. Réalisation de la cavité optique en anneau nécessaire à la génération des ondes Idler et Signal à partir d'un cristal non linéaire de PPLN. Stabilisation en fréquence de l'onde signal sur une cavité FP externe de moyenne finesse.
 - ▷ *Plus spécifiquement, un encadrement complet du travail théorique de E. Andrieux sur le traitement analytique et numérique en théorie des perturbations des caractéristiques de puissance en sortie d'un OPO simplement résonnant (article soumis récemment par mon ancien groupe).*
 - ▷ *Le co-encadrement de A. Rihan pour le montage optique expérimental de la cavité OPO doublement résonnante pompée par un Ti :saphire à 810 nm ainsi que le montage de l'asservissement Pound-Drever-Hall pour la stabilisation en fréquence de la cavité en anneau.*
- 2007 – 2008**
- Co-encadrement avec l'équipe dirigée par O. Gorceix du doctorant Q. Beaufils.
 - ▷ *Etude expérimentale de l'habillage radiofréquence des propriétés magnétiques d'un condensat de chrome pour produire des molécules au voisinage d'une résonance de Feshbach.*
- 2006**
- Encadrement complet du travail théorique d'un doctorant américain (M.M. Boyd) sur l'analyse de l'influence des effets de spin nucléaire sur la transition d'horloge à 430 THz d'un alcalino-terreux et l'interprétation des résultats expérimentaux. Caractérisation d'un laser asservi sur une cavité ultra-stable avec A. Ludlow.
 - ▷ *modèle numérique et analytique de la structure hyperfine d'un alcalino-terreux reposant sur la description semi-empirique des interactions de couplage entre les deux électrons externes du cortège électronique et le noyau atomique incluant un terme d'interaction dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique. Le modèle semi-empirique se place dans le cadre théorique de Breit et Wills..*

Collaborations nationales et internationales

- Collaboration internationale avec le professeur italien **Ennio Arimondo** de l'université de Pise sur le thème des atomes ultra-froids dans les réseaux optiques (3 publications).
- Collaboration internationale avec le chercheur américain **Jun Ye** du JILA-NIST sur la stabilisation en fréquence des lasers, les horloges optiques et les molécules froides.
- Collaboration nationale avec **Emeric de Clercq** du laboratoire SYRTE sur le thème de la métrologie temps-fréquence des horloges micro-ondes à l'Observatoire de Paris (3 publications).

Contrats

- Contrat postdoctoral de 2 ans financé par le LNE et EURAMET-IMERA dans le cadre d'un programme européen de recherche en métrologie pour l'analyse moléculaire du souffle humain → réalisation des cavités OPOs.
- Contrat postdoctoral d'un an avec 3 rapports d'étapes financé par la Délégation Générale de l'Armement (DGA) pour le développement d'un nouvel étalon de fréquence optique à Résonance Noire → Boucle à verrouillage de phase entre un laser à 461 nm (tapered diode MOPA à 922 nm et doublé en fréquence) et une diode ECDL à 1.3 microns.

Réseaux scientifiques

2013

Contact principal du LPMAA pour le Labex FIRST-TF labellisé laboratoire d'excellence dans le cadre des appels d'offre "Investissements d'avenir", réseau thématique qui regroupe les acteurs majeurs en France de la métrologie temps-fréquence (laboratoires, industriels, centres techniques, actuellement environ 40 partenaires).

REVUES À COMITÉ DE LECTURE

T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC), J. DA COSTA, H. ELAN-DALOUSSI, C. JANSSEN. "Linear frequency ramping of a rapidly tuning diode laser for isotope analysis of ambient CO_2 ." **Article en préparation** (2014).

• *Horloges atomiques optiques et micro-ondes*

[1] **T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC)**, E. de CLERCQ, and E. ARIMONDO. "Magic radio-frequency dressing of nuclear spins in high-accuracy optical clocks." **PHYSICAL REVIEW LETTERS** **109**, 223003 (2012).

[2] M.M. BOYD, T. ZELEVINSKY, A.D. LUDLOW, S. BLATT, **T. ZANON-WILLETTE (JILA)**, S.M. FOREMAN, and J. YE. "Nuclear spin effects in optical lattice clocks." **PHYSICAL REVIEW A** **76**, 022510 (2007).

[3] S. GUERANDEL, **T. ZANON (SYRTE)**, N. CASTAGNA, F. DAHES, E. de CLERCQ, N. DIMARQ, and A. CLAIRON. "Raman-Ramsey Interaction for Coherent Population Trapping Cs Clock." **IEEE TRANSACTIONS ON INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT** **56**, 383 (2007).

[4] **T. ZANON-WILLETTE (JILA)**, A.D. LUDLOW, S. BLATT, M.M. BOYD, E. ARIMONDO, and J. YE. "Cancellation of Stark Shifts in Optical Lattice Clocks by Use of Pulsed Raman and Electromagnetically Induced Transparency Techniques." **PHYSICAL REVIEW LETTERS** **97**, 233001 (2006).

[5] **T. ZANON (SYRTE)**, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARQ, and A. CLAIRON. "High Contrast Ramsey Fringes with Coherent-Population-Trapping Pulses in a Double Lambda Atomic System." **PHYSICAL REVIEW LETTERS** **94**, 193002 (2005).

[6] **T. ZANON (SYRTE)**, S. TREMINE, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARQ, and A. CLAIRON. "Observation of Raman-Ramsey Fringes With Optical CPT Pulses." **IEEE TRANSACTIONS ON INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT** **54**, 776 (2005).

• *Physique atomique et moléculaire, spectroscopie des gaz quantiques*

[7] **T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC)**, E. de CLERCQ, and E. ARIMONDO. "Continued fraction analysis of dressed systems : application to periodically driven optical lattices." **PHYSICAL REVIEW A** **87**, 023424 (2013).

[8] **T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC)**, E. de CLERCQ, and E. ARIMONDO. "Ultrahigh-resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances : Exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime." **PHYSICAL REVIEW A** **84**, 062502 (2011).

[9] Q. BEAUFILS, **T. ZANON (LPL-Paris 13)**, B. LABURTHE-TOLRA, E. MARECHAL, L. VERNAC, J.-C. KELLER, O. GORCEIX. "Radio-frequency association of molecules : an assisted Feshbach resonance." **EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D** **56**, **99** (2010).

[10] Q. BEAUFILS, A. CRUBELLIER, **T. ZANON (LPL-Paris 13)**, B. LABURTHE-TOLRA, E. MARÉCHAL, L. VERNAC, O. GORCEIX. "Feshbach resonance in d-wave collisions." **PHYSICAL REVIEW A** **79**, **032706** (2009).

[11] Q. BEAUFILS, **T. ZANON (LPL-Paris 13)**, R. CHICIREANU, B. LABURTHE-TOLRA, E. MARÉCHAL, L. VERNAC, J.-C. KELLER, and O. GORCEIX. "Radio-frequency induced ground-state degeneracy in a Bose-Einstein condensate of chromium atoms." **PHYSICAL REVIEW A** **78**, **051603(R)** (2008).

[12] Q. BEAUFILS, R. CHICIREANU, **T. ZANON (LPL-Paris 13)**, B. LABURTHE-TOLRA, E. MARÉCHAL, L. VERNAC, J.-C. KELLER, and O. GORCEIX. "All-optical production of chromium Bose-Einstein condensates." **PHYSICAL REVIEW A** **77**, **061601(R)** (2008).

• *Optique non linéaire et Instrumentation laser*

[13] E. ANDRIEUX, **T. ZANON-WILLETTE (INM-CNAM)**, M. CADORET, A. RIHAN, J.J. ZONDY. "500 GHz mode-hop-free idler tuning range with a frequency-stabilized singly resonant optical parametric oscillator." **OPTICS LETTERS** **36**, **1212** (2011)¹.

[14] A. RIHAN, E. ANDRIEUX, **T. ZANON (INM-CNAM)**, M. CADORET, J.J. ZONDY. " Development of a continuously tunable mid-infrared optical parametric oscillator for radiometric and pyrometric applications." **REVUE FRANÇAISE de MÉTROLOGIE** **28**, **1** (2011).

[15] A. RIHAN, E. ANDRIEUX, **T. ZANON-WILLETTE (INM-CNAM)**, S. BRIAUDEAU, M. HIMBERT, J.J. ZONDY. "A pump-resonant signal-resonant optical parametric oscillator for spectroscopic breath analysis." **APPLIED PHYSICS B** **102**, **367** (2010).

[16] F.A. CAMARGO, **T. ZANON-WILLETTE (INM-CNAM)**, N.U. WETTER, J.J. ZONDY. " Tunable Single Frequency Nd :YVO / BiB3O6 Ring Laser at 671 nm." **IEEE JOURNAL OF QUANTUM ELECTRONICS** **46**, **804** (2010).

[17] J.J. ZONDY, F. CAMARGO, **T. ZANON (INM-CNAM)**, V. PETROV, N.U. WETTER. " Observation of strong cascaded Kerr-lens dynamics in an optimally-coupled cw intracavity frequency-doubled Nd :YLF ring laser." **OPTICS EXPRESS** **18**, **4796** (2010).

1. Cet article a été sélectionné par les éditeurs de l'OSA (Optical Society of America) pour être publié dans le Virtual Journal of Biomedical Optics 6(5), Juin 2011, Catégorie : Novel Light Sources, Optics and Detectors.

[18] A.D. LUDLOW, X. HUANG, M. NOTCUTT, **T. ZANON-WILLETTE (JILA)**, S.M. FOREMAN, M.M. BOYD, S. BLATT, and J. YE. "Compact, thermal-noise-limited optical cavity for diode laser stabilization at 10^{-15} ." **OPTICS LETTERS** **32**, 641 (2007).

BREVETS

2005 Brevet national puis européen déposé par le CNRS. Inventeurs : DIMARCQ NOEL (FR), GUERANDEL STEPHANE (FR), HOLLEVILLE DAVID (FR), ZANON THOMAS (FR).
EP 1730608 (A1) - PROCÉDÉ DE GÉNÉRATION D'UN SIGNAL D'HORLOGE ATOMIQUE A PIÉGEAGE COHÉRENT DE POPULATION ET HORLOGE ATOMIQUE CORRESPONDANTE.

LISTE COMPLÈTE DES ACTES DE COLLOQUES ET DES PROCEEDINGS

[1] E. ANDRIEUX, A. RIHAN, T. ZANON-WILLETTE, M. CADORET, J.J. ZONDY. "500-GHz Mode-Hop-Free Idler Tuning range with a Frequency-Stabilized Singly-Resonant Parametric Oscillator." **Proceedings of CLEO : Science and Innovations (CLEO : S and I) Baltimore, Maryland May 1, (USA) (2011)**.

[2] F. CAMARGO, T. ZANON-WILLETTE, T. BADR, N.U. WETTER, J.J. ZONDY. "Single-frequency and Kerr-lens mode-locked Nd :YLF/ppKTP ring laser." **Lasers and Electro-Optics 2009 and the European Quantum Electronics Conference. CLEO Europe - EQEC (2009)**.

[3] F. CAMARGO, R. SARROUF, T. BADR, T. ZANON-WILLETTE , N.U. WETTER, J.J. ZONDY. "High-Power Diode-Pumped Single-Frequency Nd :YLF and Nd :YVO4 Lasers with Intra-cavity Second-Harmonic Generation to the Red Range." **PhotonicsGlobal@Singapore, 2008. IPGC (2008)**.

[4] T. ZANON, S. GUERANDEL, F DAHES, E. de CLERCQ, A. CLAIRON, N. DIMARCQ. "Recent results on a pulsed CPT clock." **Proceedings of Joint EFTF-FCS à Vancouver (Canada) (2005)**.

[5] T. ZANON, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "Time sequence optimization and optical detuning effects in a Raman-Ramsey frequency standard." **Proceedings of EFTF à Besançon (Fr) (2005)**.

[6] T. ZANON, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "Observation of Raman-Ramsey fringes with optical CPT pulses." **Proceedings of CPEM à Londres (UK) (2004)**.

[7] T. ZANON, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "Towards an atomic clock with coherent population trapping pulses." **Proceedings of EFTF à Guildford (UK) (2004)**.

[8] T. ZANON, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCO, A. CLAIRON. "Piégeage cohérent de population sur des atomes froids." **Proceedings of J. Phys. IV 119, 291 (2004).**

[9] T. ZANON, S. GUERANDEL, E. de CLERCQ, A. CLAIRON, N. DIMARCO. "Coherent population trapping with cold atoms" **Proceedings of Joint EFTF-FCS à Tampa Floride (USA) (2003).**

LISTE COMPLÈTE DE MES COMMUNICATIONS ORALES

- | | |
|-------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 2007 | [1] Communication orale à l'école d'été "Atom Optics and Space Physics" ENRICO FERMI à Varennes (Italie). |
| 2006 | [2] "Dark resonance pulses : Two-photon Ramsey oscillations in a radiative three-level system : Application to optical lattice clocks", séminaire au NIST Boulder Colorado (USA) le 17 Janvier 2006. |
| 2005 | [3] "Coherent Population trapping techniques at LNE-SYRTE", séminaire au JILA à l'université de Boulder Colorado (USA) le 1er Décembre 2005. |
| 2004 | [4] "Ramsey fringes with Dark resonances : Application to atomic clocks", séminaire au MIT et au Harvard Smithsonian center for astrophysics à Boston (USA) 06-11 Décembre 2004.
[5] "Observation of Ramsey fringes with Optical CPT pulses." Communication orale à la conférence EFTF à Guildford (UK) 05-07 Avril 2004. |

LISTE COMPLÈTE DES COMMUNICATIONS PAR AFFICHE

- | | |
|-------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 2012 | [1] T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC) , S. ALMONACIL, J. DA COSTA, C. JANSSEN. "Linear frequency ramping of a rapidly tuning diode laser for isotope analysis of ambient CO_2 ." 11th conférence ASA-HITRAN 29-31 Août 2012.
[2] T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC) , E. de CLERCQ, E. ARIMONDO. "Magic radio-frequency dressing of nuclear spins in high-accuracy optical clocks." XXIII International Conference on Atomic Physics ICAP Ecole Polytechnique 23-27 Juillet 2012.
[3] T. ZANON-WILLETTE (LPMAA-UPMC) , E. de CLERCQ, E. ARIMONDO. "Ultrahigh-resolution spectroscopy with atomic or molecular dark resonances : Exact steady-state line shapes and asymptotic profiles in the adiabatic pulsed regime." XXIII International Conference on Atomic Physics ICAP Ecole Polytechnique 23-27 Juillet 2012. |
|-------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|

- 2007**
- [4] G.K. CAMPBELL, S. BLATT, M.M. BOYD, A.D. LUDLOW, T. ZELEVINSKY, S.M. FOREMAN, **T. ZANON (JILA)**, J. YE. "Ultra-high resolution spectroscopy with a ^{87}Sr lattice clock." **American physical Society DAMOP Calgary (Canada) 6-8 Juin 2007.**
- [5] S. BLATT, M.M. BOYD, A.D. LUDLOW, T. ZELEVINSKY, S.M. FOREMAN, **T. ZANON (JILA)**, G.K. CAMPBELL, J. YE. "Optical Lattice Clock with Fermionic Strontium." **American physical Society DAMOP Calgary (Canada) 6-8 Juin 2007.**
- [6] **T. ZANON (JILA)**, A.D. LUDLOW, S. BLATT, M.M. BOYD, T. ZELEVINSKY, G.K. CAMPBELL, E. ARIMONDO, J. YE. "Atomic coherence engineering using controllable phase-shifts : Towards a pulsed EIT-Raman lattice clock at JILA." **American physical Society DAMOP Calgary (Canada) 6-8 Juin 2007.**
- 2006**
- [7] **T. ZANON (JILA)**, A.D. LUDLOW, S. BLATT, M.M. BOYD, S. FOREMAN, T. ZELEVINSKY, T. IDO, E. ARIMONDO, J. YE. "Dynamic cancellation of ac Stark shifts for pulsed EIT/Raman optical lattice clock." **XX International Conference on Atomic Physics ICAP à Innsbruck (Autriche) 16-21 Juillet 2006.**
- [8] **T. ZANON (JILA/SYRTE)**, S. GUERANDEL, E de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON, E. ARIMONDO, J. YE. "Adiabatic three-level Raman/Bloch equations for NMR-like quantum coherence engineering." **XX International Conference on Atomic Physics ICAP à Innsbruck (Autriche) 16-21 Juillet 2006.**
- 2004**
- [9] **T. ZANON (SYRTE)**, S. GUERANDEL, E de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "High contrast Raman-Ramsey fringes." **XIX International Conference on Atomic Physics ICAP et Workshop à Rio de Janeiro (Brésil) 18-27 Juillet 2004.**
- 2003**
- [10] **T. ZANON (SYRTE)**, S. GUERANDEL, E de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "Piégeage Coherent de Population sur des atomes froids." **COLOQ 8 (Toulouse) 08-15 Septembre 2003.**
- [11] **T. ZANON (SYRTE)**, S. GUERANDEL, E de CLERCQ, D. HOLLEVILLE, N. DIMARCQ, A. CLAIRON. "Development of a cold atoms clock based on CPT." **EFTE-FCS à Tampa Floride (USA) 04-08 Mai 2003.**

Résumé

Ce mémoire porte sur mes travaux de recherche à l'interface entre la physique atomique des horloges et l'instrumentation laser. Ils ont pour objectif de réaliser de nouveaux spectromètres à très haute résolution en fréquence en réalisant la spectroscopie laser de transitions atomiques faiblement permises par couplage dipolaire électrique ou complètement interdites à des fréquences de référence de plusieurs centaines de térahertz. Après avoir brièvement rappelé la structure hyperfine et magnétique de la transition d'horloge de l'état fondamental du césium, atome retenu depuis 1967 pour la définition de la seconde, je poursuivrai avec une étude détaillée, théorique et expérimentale, des états magnétiques d'un spin nucléaire par spectroscopie laser de la transition d'horloge optique entre les états 1S_0 et 3P_0 d'une espèce fermionique possédant une configuration électronique (ns,nl) avec deux électrons de valence comme le strontium, l'ytterbium ou le mercure. Nous discuterons également l'existence d'un champ magnétique statique "magique" capable de réduire fortement le déplacement linéaire et quadratique Zeeman de la transition d'horloge grâce à l'habillage du spin nucléaire à l'aide d'un champ de radiofréquence. Le manuscrit se focalise ensuite sur la possibilité de réaliser l'interrogation de la transition interdite en préparant l'espèce bosonique, de spin nucléaire nul, dans une superposition d'états quantiques transparente à la lumière laser. Afin de garantir une préparation rapide et efficace de cette superposition d'états tout en éliminant la correction de fréquence induite par la présence de déplacements lumineux, le mémoire présente une nouvelle méthode de spectroscopie à 2 photons par résonance noire en régime impulsionnelle étendue ensuite à la spectroscopie Hyper-EIT/Raman.

Le manuscrit se termine avec la présentation d'un nouveau projet de recherche sur la spectroscopie laser infrarouge en sciences atmosphériques et astrophysiques à l'interface entre la physique moléculaire et le développement instrumental d'une source laser ultra-stable en fréquence.